PAT-NO:

JP02006016384A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 2006016384 A

TITLE:

AMINE COMPOUND, AND ORGANIC ELECTROLUMINESCENT

DEVICE

CONTAINING THE SAME

PUBN-DATE:

January 19, 2006

INVENTOR-INFORMATION:

NAME COUNTRY TOTANI, YOSHIYUKI N/A TANABE, YOSHIMITSU N/AOCHI, TAKAHIKO N/A TSUKADA, HIDETAKA N/A SHIMAMURA, TAKEHIKO N/A

ASSIGNEE-INFORMATION:

COUNTRY NAME

MITSUI CHEMICALS INC N/A

APPL-NO:

JP2005159559

APPL-DATE: May 31, 2005

PRIORITY-DATA: 2004165607 (June 3, 2004)

ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescent containing a new amine compound.

SOLUTION: The new amine compound is represented by the general formula(1)[

wherein, R1 to R3 are each a halogen atom, (substituted) amino or -

group[wherein, Z is a (substituted) straight-chain, branched-chain or cyclic

alkyl, (substituted) aryl or (substituted) aralkyl; X is an oxygen

sulfur atom; and n' is 0 or 1]; l, m and n are each an integer of 0-4; s and t

are each an integer of 0-5, wherein s+l≤5, t+m≤5, and at least one of s and t is an integer of ≥1]. The organic electroluminescent device with high stability and durability containing this amine compound is also provided.

COPYRIGHT: (C) 2006, JPO&NCIPI

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公 開 特 許 公 報(A)

(11)特許出願公開番号

特開2006-16384 (P2006-16384A)

最終頁に続く

(43) 公開日 平成18年1月19日(2006.1.19)

(51) Int.C1.	FI		テーマコード(参考)
CO7D 241/42	(2006.01) CO7D	241/42 CSP	3K007
CO7D 401/10	(2006.01) CO7D	401/10	4CO63
CO9K 11/08	(2008.01) CO9K	11/06 650	•
HO1L 51/50	(2006.01) CO9K	11/06 690	
	но 5 В	33/14 B	
	審査請求 未	請求 請求項の数 11 O	L (全 64 頁) 最終頁に続く
(21) 出願番号	特願2005-159559 (P2005-159559)	(71) 出願人 000005887	
(22) 出願日	平成17年5月31日 (2005.5.31)	三井化学株	式会社
(31) 優先權主張番号	特顧2004-165607 (P2004-165607)	東京都港区東新橋一丁目5番2号	
(32) 優先日	平成16年6月3日 (2004.6.3)	(72)発明者 戸谷 由之	
(33) 優先権主張国	日本国(JP)	千葉県袖ヶ	浦市長浦580-32 三井化
		学株式会社	内
		(72) 発明者 田辺 良満	
		千葉県袖ヶ	浦市長浦580-32 三井化
		学株式会社	内
•		(72)発明者 越智 貴彦	
		千葉県袖ヶ	浦市長浦580-32 三井化
•		学株式会社	内
		(72)発明者 塚田 英孝	
		1	浦市長浦580-32 三井化
		学株式会社(内

(54) 【発明の名称】アミン化合物、および該アミン化合物を含有する有機電界発光素子

(57)【要約】

(修正有)

【課題】新規なアミン化合物を含有してなる有機電界発光素子。

【解決手段】一般式(1)で表されるアミン化合物。

$$(R_2)_{m} \xrightarrow{|A_2|_{t}} (R_1)_{s}$$

$$(R_2)_{m} \xrightarrow{|A_2|_{t}} (R_1)_{s}$$

$$(R_3)_{n} (1)$$

10

[式中、R₁ ~R₃ は、ハロゲン原子、置換または未置換のアミノ基、あるいは、-(X) n' -2基(式中 2 は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、n'は 0 または 1 を表す)を表し、1 、mおよび 1 は 0 を表し、1 を表す)を表し、1 、mおよび 1 な 1 の整数を表し、1 を表す)なまし、1 に 1 の 1 を表す)を表し、1 に 1 に 1 の 1 を表す)を表し、1 に 1

【効果】安定性、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供。

【選択図】なし

【特許請求の範囲】

【請求項1】

一般式(1)(化1)で表されるアミン化合物。

$$(R_2)_{m} \xrightarrow{(A_2)_{t}} (A_{1})_{s}$$

$$(R_2)_{m} \xrightarrow{(R_3)_{n}} (R_1)_{1}$$

$$(R_3)_{n}$$

10

20

30

「式中、 $R_1 \sim R_3$ は、ハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、-(X) n' -Z基(式中、Zは置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Xは酸素原子または硫黄原子を表し、n は 0 または 1 を表す)を表し、1、m および n は 0 または 1 を表す)を表し、1、m および n が 2 以上の場合、 $R_1 \sim R_3$ はそれぞれ隣接する置換基同士で環を形成していてもよく、 A_1 および A_2 は下記一般式(2)で表される基

(2)

(式中、A r_1 および A r_2 は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、A r_1 および A r_2 が、互いに結合して環を形成していてもよい)を表し、 s および t は $0\sim 5$ の整数を表し、 $s+1\leq 5$ 、 $t+m\leq 5$ であり、 s および t の少なくとも一方は 1 以上の整数である〕

【請求項2】

一般式(3)(化3)で表される請求項1記載のアミン化合物。

$$(R_2) \underset{m}{\overset{\text{I}}{\bigwedge}} Ar_2$$

$$(R_2) \underset{m}{\overset{\text{I}}{\bigwedge}} (R_1)_1$$

$$(R_3)_n$$

$$(3)$$

40

50

「式中、 R_1 および R_2 は、ハロゲン原子、あるいは、- (X) n $^{\prime}$ - Z 基(式中、Z は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、n $^{\prime}$ は 0 または 1 を表す)を表し、 R_3 は、ハロゲン原子、置換もしくは無置換のアミノ基、あるいは- (X) n $^{\prime}$ - Z 基(式中、Z は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換の

アラルキル基を表し、Xは酸素原子または硫黄原子を表し、n は0または1を表す)を表し、1、mおよびnは $0\sim4$ の整数を表し、1、mおよびnが2以上の場合、 $R_1\sim R_3$ はそれぞれ隣接する置換基同士で環を形成していてもよく、 A_{Γ_1} および A_{Γ_2} は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 A_{Γ_1} および A_{Γ_2} が、互いに結合して環を形成していてもよく、 $-NA_{\Gamma_1}$ A_{Γ_2} の置換位置はベンゼン環のo-位、m-位およびp-位から選ばれる任意の置換位置である〕

【請求項3】

一般式(1)において、s および t のどちらか一方が 0 であり、他方が 2 以上の整数であり、 R_1 および R_2 は、ハロゲン原子、あるいは、- (X) n - - 2 基(式中、Z は置換または無置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、n 'は 0 または 1 を表す)を表し、 R_3 はハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、- (X) n - - Z 基(式中、Z は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、D 'は D または D を表す 請求項 D 記載のアミン化合物。

【請求項4】

一般式(1)において、 A_1 および A_2 が以下の条件(イ)または(ロ)を満たし、 R_1 および R_2 は、ハロゲン原子、あるいは、- (X) n ' - Z 基(式中、Z は置換または無置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、n ' は 0 または 1 を表す)を表し、 R_3 はハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、- (X) n ' - Z 基(式中、Z は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、X が X で表す 請求項 X 記載のアミン化合物。

条件(イ):一般式(1)において、s および t がそれぞれ1以上の整数である場合、 A_1 および A_2 の少なくとも一方はキノキサリン環の結合したベンゼン環上のp 一位以外の置換位置に結合する。

条件(ロ):一般式(1)において、s および t がそれぞれ 1 以上の整数であり、 A_1 および A_2 の両方がキノキサリン環の結合したベンゼン環上の p 一位に位置する場合、 A_1 および/または A_2 の一般式(2)で表される基において、 A_{11} および/または A_{12} の少なくとも一方は 3 環以上の縮合炭化水素基を表す。

【請求項5】

一対の電極間に、請求項1~4記載のアミン化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

【請求項6】

請求項1~4記載のアミン化合物を含有する層が、電荷注入輸送層である請求項5記載の有機電界発光素子。

【請求項7】

電荷注入輸送層が正孔注入輸送層である請求項6記載の有機電界発光素子。

【請求項8】

電荷注入輸送層が電子注入輸送層である請求項6記載の有機電界発光素子。

【請求項9】

請求項1~4記載のアミン化合物を含有する層が、発光層である請求項5記載の有機電界発光素子。

【請求項10】

一対の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する請求項 5 ~ 9 のいずれかに記載の有機 電界発光素子。 10

20

30

【請求項11】

一対の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する請求項 5~10 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

[0001]

本発明は、新規なアミン化合物および該アミン化合物を含有してなる有機電界発光素子に関する。

【背景技術】

[0002]

電界発光現象を利用する電界発光素子は、液晶表示に比べて自発光型であるために視認性が高く、さらに高速な応答性が得られるため、ディスプレイ等に使用すると鮮明な画像表示が可能であり、また、全固体型素子であるために耐衝撃性に優れている等の特徴を有

している。そのため、近年、薄型ディスプレイ、液晶ディスプレイのバックライト、ある いは平面光源などに広く使用されることが期待されている。

[0003]

ここで、電界発光素子は構成する材料により無機電界発光素子と、有機電界発光素子と に大別することができる。無機電界発光素子は硫化亜鉛等の無機材料を用いた分散型電界 発光素子であるが、この分散型電界発光素子の駆動方式は高電界の印加により、加速され た電子が発光中心を衝突励起して発光させるという所謂「衝突励起型発光」であるため、 高い交流電圧で駆動させる必要がある。そのため、駆動回路が複雑になったり、また、輝 度が低い等の課題を有している。

[0004]

一方、有機電界発光素子(有機エレクトロルミネッセンス素子:有機 E L 素子)は、電極から注入された電荷(正孔および電子)が有機化合物からなる発光層中で再結合して発光するという所謂「注入型発光」であるため、低電圧駆動することが可能である(非特許文献 1 及び特許文献 1)。また、有機化合物の分子設計を変更することによって、任意の発光色、特性を容易に変化させることが可能であるという利点もある。このため現在では、種々の材料や素子構成等が提案され、研究開発が活発化している。

[0005]

その一方で、これまでに提案された材料を用いる有機電界発光素子には、まだ様々な問題・課題が残されている。例えば、駆動状態、あるいは非駆動状態にも関わらず、保存するだけで素子の機能が劣化して発光輝度が低下するという発光寿命上の問題が存在する。また、一般的に発光輝度がまだ低く、実用上充分ではない。

[0006]

発光輝度を向上させる方法として発光層にホスト材料としてトリス(8 ーキノリノラート)アルミニウム等を使用し、ゲスト化合物としてクマリン誘導体、ピラン誘導体を使用した有機電界発光素子(非特許文献 2)、ゲスト化合物としてN、Nージメチルキナクリドンを使用した有機電界発光素子(例えば、非特許文献 3)、ゲスト化合物としてルブレンを使用した有機電界発光素子(例えば、非特許文献 4)が提案されている。また、発光層の材料としてアントラセン誘導体を用いた有機電界発光素子も提案されている(特許文献 2、特許文献 3)。さらには、発光層の材料としてキノキサリン誘導体を用いた有機電界発光素子(特許文献 4)、また電子輸送層としてキノキサリン誘導体(ピラジノキノキサリン誘導体)を使用した有機電界発光素子も提案されている(特許文献 5)。しかしながら、これらの化合物を使用した有機電界発光素子も、まだ、安定性、耐久性の面で問題があり、充分とは言い難い。

[0007]

現在では、さらに高輝度に発光し、発光寿命の長い、安定性、耐久性に優れた有機電界 発光素子が望まれている。

【非特許文献 1 】 Appl. Phys. Lett., 51, 913 (1987)

10

20

30

【非特許文献 2 】 J. Appl. Phys., 65, 3610 (1989)

【非特許文献 3 】 Appl. Phys. Lett., 70, 1665 (1997)

【非特許文献 4 】 Jpn. J. Appl. Phys., 34, L824(1995)

【特許文献1】特開昭63-264692号公報

【特許文献2】特開平8-12600号公報

【特許文献3】特開平10-36832号公報

【特許文献 4】特開平7-53954号公報

【特許文献5】特開平9-3342号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

[0008]

本発明の課題は、アミン化合物および該化合物を含有する有機電界発光素子を提供することである。さらに詳しくは、有機電界発光素子の発光材料等に適した、アミン化合物、および該化合物を使用した、安定性、耐久性に優れ、且つ耐熱性の高い有機電界発光素子を提供することである。

【課題を解決するための手段】

[0009]

本発明者らは、上記課題を解決するために、種々のアミン化合物および有機電界発光素子に関して鋭意検討を行った結果、本発明を完成させるに至った。すなわち、本発明は、 〈1〉: 一般式(1)(化1)で表されるアミン化合物、

[0010]

$$(R_2)_{m} \xrightarrow{(A_2)_{t}} (A_1)_{s}$$

$$(R_2)_{m} \xrightarrow{(R_3)_{n}} (R_3)_{n}$$

$$(R_3)_{n}$$

[0011]

[式中、 $R_1 \sim R_3$ は、ハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、-(X) n'-Z基(式中、Z は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、n' は 0 または 1 を表す)を表し、1、1 、1 に 1

[0012]

(2)

[0013]

(式中、Ar」およびAr2は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、Ar」およびAr2が、互いに結合して環を形成していてもよい)を表し、sおよび t は

10

20

30

40

 $0 \sim 5$ の整数を表し、 s + 1 ≤ 5 、 t + m ≤ 5 であり、 s および t の少なくとも一方は 1 以上の整数である〕

〈2〉: 一般式(3)(化3)で表される〈1〉記載のアミン化合物、

[0014]

$$(R_2) \stackrel{\text{m}}{\underset{\text{N}}{\longrightarrow}} (R_1)_1$$

$$(R_3)_{\text{m}} (R_3)_{\text{n}} (3)$$

10

[0015]

[式中、 R_1 および R_2 は、ハロゲン原子、あるいは、- (X) n , - Z 基(式中、Z は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、X は 酸素原子または硫黄原子を表し、X は で X が、 X は で X は で X が、 X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な X は で X な

30

[0016]

く3>: 一般式(1)において、s および t のどちらか一方が 0 であり、他方が 2 以上の整数であり、 R_1 および R_2 は、ハロゲン原子、あるいは、一(X) n' -2 基(式中、Z は置換または無置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、n' は 0 または 1 を表す)を表し、 R_3 はハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、-(X) n' -Z 基(式中、Z は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、n は 0 または 1 を表すく1 〉記載のアミン化合物、

40

50

 $<4>:-般式(1)において、<math>A_1$ および A_2 が以下の条件(イ)または(ロ)を満たし、 R_1 および R_2 は、ハロゲン原子、あるいは、-(X) n'-Z基(式中、Zは置換または無置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Xは酸素原子または硫黄原子を表し、n'は 0 または 1 を表す)を表し、 R_3 はハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、-(X) n'-Z基(式中、Zは置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、n'は 0 または 1 を表す〉を表す<1>記載のアミン化合物、

条件(イ): 一般式(1)において、sおよびtがそれぞれ1以上の整数である場合、 A_1 および A_2 の少なくとも一方はキノキサリン環の結合したベンゼン環上のp-位以外

の置換位置に結合する。

条件(ロ):一般式(1)において、sおよび t がそれぞれ 1 以上の整数であり、 A_1 および A_2 の両方がキノキサリン環の結合したベンゼン環上の p 一位に位置する場合、 A_1 および / または A_2 の一般式(2)で表される基において、 A_{11} および / または A_{12} の少なくとも一方は 3 環以上の縮合炭化水素基を表す。

〈5〉:一対の電極間に、〈1〉~〈4〉記載のアミン化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子、

〈6〉:〈1〉~〈4〉記載のアミン化合物を含有する層が、電荷注入輸送層である〈5〉記載の有機電界発光素子、

く7>:電荷注入輸送層が正孔注入輸送層である<6>記載の有機電界発光素子、

<8>:電荷注入輸送層が電子注入輸送層である<6>記載の有機電界発光素子、

〈9〉:〈1〉~〈4〉記載のアミン化合物を含有する層が、発光層である〈5〉記載の有機電界発光素子、

<10>:一対の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する<5>~<10>のいずれかに記載の有機電界発光素子、

<1 1>:一対の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する<5>~<1 0>のいずれかに記載の有機電界発光素子、

を提供するものである。

【発明の効果】

[0017]

本発明により、新規なアミン化合物、および該アミン化合物を使用した発光寿命が長く、耐久性に優れた、耐熱性の高い有機電界発光素子を提供することが可能になる。

【発明を実施するための最良の形態】

[0018]

以下、本発明に関し詳細に説明する。本発明のアミン化合物は一般式(1)(化4)で表される化合物である。

[0019]

$$(R_{2})_{m} \xrightarrow{(A_{2})_{t}} (A_{1})_{s}$$

$$(R_{2})_{m} \xrightarrow{(R_{3})_{n}} (R_{1})_{1}$$

$$(R_{3})_{n}$$

[0020]

[0021]

20

10

30

50

(2)

[0022]

(式中、 Ar_1 および Ar_2 は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、 Ar_1 および Ar_2 が、互いに結合して環を形成していてもよい)を表し、s および t は $0\sim5$ の整数を表し、 $s+1\leq5$ 、 $t+m\leq5$ であり、s および t の少なくとも一方は 1 以上の整数である。

[0023]

本願明細書において、「置換または未置換の」とは、「ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アルキルチオ基、アリール基、アリールオキシ基、アリールチオ基、アラルキル基、アラルキルオキシ基、あるいはアラルキルチオ基で単置換または多置換された、または未置換の」を意味する。

[0024]

これらの基(但し、ハロゲン原子を除く)の具体例を示せば、アルキル基としては炭素数 $1 \sim 1$ 6 のアルキル基、アルコキシ基としては炭素数 $1 \sim 1$ 6 のアルコキシ基、アルキルチオ基としては炭素数 $1 \sim 1$ 6 のアルキルチオ基としては炭素数 $1 \sim 1$ 6 のアルキルチオ基、アリール基としては炭素数 $1 \sim 2$ 0 のアリール基、アリールオキシ基としては炭素数 $1 \sim 2$ 0 のアリールオキシ基、アリールチオ基としては炭素数 $1 \sim 2$ 0 のアラルキル基としては炭素数 $1 \sim 3$ 0 のアラルキル基、アラルキルオキシ基、アラルキルチオ基としては炭素数 $1 \sim 3$ 0 のアラルキルチオ基としては炭素数 $1 \sim 3$ 0 のアラルキルチオ基が挙げられる。

[0025]

一般式(1)で表されるアミン化合物において、 $R_1 \sim R_3$ は、ハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、-(X) n'-Z基(式中、Z は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、n' は 0 または 1 を表す)を表す。

[0026]

 $R_1 \sim R_3$ は、好ましくは、ハロゲン原子、炭素数 $1 \sim 1$ 6 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 $4 \sim 2$ 0 の置換または未置換のアリール基、あるいは、炭素数 $5 \sim 2$ 0 の置換または未置換のアラルキル基で置換された、もしくは未置換のアミノ基、あるいは、-(X) n'-Z (式中 Z は、置換または未置換の炭素数 $1 \sim 1$ 6 の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、炭素数 $4 \sim 2$ 0 の置換または未置換のアリール基、あるいは、炭素数 $1 \sim 3$ 0 の置換または未置換のアラルキル基を表し、 $1 \sim 3$ 0 の置換または未置換のアラルキル基を表し、 $1 \sim 3$ 0 の置換または未置換のアリール基、あるいは、炭素数 $1 \sim 3$ 0 の置換または未置換のアラルキル基により置換された、もしくは未置換のアミノ基、あるいは、 $1 \sim 3$ 0 の置換または、炭素数 $1 \sim 3$ 0 の置換または環状のアルキル基、炭素数 $1 \sim 3$ 0 の置換または環状のアラルキル基、炭素数 $1 \sim 3$ 0 の置換または、炭素数 $1 \sim 3$ 0 の置換または環状のアリール基、炭素数 $1 \sim 3$ 0 の置換または環状のアリール基、炭素数 $1 \sim 3$ 0 の置換または表置換のアリール基、 あるいは、炭素数 $1 \sim 3$ 0 の置換または未置換のアリール基、 あるいは、 炭素数 $1 \sim 3$ 0 の置換または未置換のアリール基を表し、 $1 \sim 3$ 0 の置換または $1 \sim 3$ 0 の置換または $1 \sim 3$ 0 の 置換または $1 \sim 3$ 0

[0027]

また、 $R_1 \sim R_3$ は、好ましくは、 R_1 および R_2 がハロゲン原子、あるいはー(X) n'-Z(式中、Z は、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、n' は0 または1 を表す)を表し、 R_3 が、ハロゲン原子、

置換もしくは無置換のアルキル基、あるいは-(X) n'-Z基(式中、Zは置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、Xは酸素原子または硫黄原子を表し、n'は0または 1 を表す)を表す。

[0028]

 $R_1 \sim R_3$ のハロゲン原子の具体例としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子あるいはヨウ素原子を挙げることができる。

[0029]

 $R_1 \sim R_3$ の置換もしくは未置換のアミノ基の具体例としては、アミノ基、N-メチル アミノ基、N-エチルアミノ基、N-n-プロピルアミノ基、N-イソプロピルアミノ基 、N-n-ブチルアミノ基、N-イソブチルアミノ基、N-sec-ブチルアミノ基、N-te rt-ブチルアミノ基、N-n-ペンチルアミノ基、N-シクロペンチルアミノ基、N-n - ヘキシルアミノ基、N-シクロヘキシルアミノ基、N-ベンジルアミノ基、N-フェネ チルアミノ基、N-フェニルアミノ基、N-(1-ナフチル)アミノ基、N-(2-ナフ チル) アミノ基、N-(4-フェニルフェニル) アミノ基、N-(3-フェニルフェニル) アミノ基、N-(2-フェニルフェニル) アミノ基、N-(4-メチルフェニル) アミ ノ基、N-(2-メチルフェニル)アミノ基、N-(2-アントラニル)アミノ基、N-(9-アントラニル)アミノ基、N, N-ジメチルアミノ基、N, N-ジエチルアミノ基 、N, N-ジ-n-プロピルアミノ基、N, N-ジ-イソプロピルアミノ基、N, N-ジ - n - ブチルアミノ基、N、N - ジーイソブチルアミノ基、N, N - ジーsec-ブチルアミ ノ基、N、N-ジ-n-ペンチルアミノ基、N,N-ジシクロペンチルアミノ基、N,N - ジシクロヘキシルアミノ基、N、N - ジベンジルアミノ基、N、N - ジフェネチルアミ ノ基、N-メチル-N-エチルアミノ基、N-メチル-N-n-プロピルアミノ基、N-メチルーNーイソプロピルアミノ基、NーメチルーNーnープチルアミノ基、Nーメチル - N-tert-ブチルアミノ基、N-メチル-N-シクロペンチルアミノ基、N-メチル-Nーシクロヘキシルアミノ基、NーメチルーNーベンジルアミノ基、NーメチルーNーフ ェネチルアミノ基、 N-エチル-N-tert-ブチルアミノ基、 N-エチル-N-シクロへ キシルアミノ基、N-エチル-N-ベンジルアミノ基、N-イソプロピル-N-シクロペ ンチルアミノ基、N-イソプロピル-N-シクロヘキシルアミノ基、N-イソプロピル-N-ベンジルアミノ基、N-tert-ブチルーN-シクロヘキシルアミノ基、N-tert-ブチ ルーN-ベンジルアミノ基、N-シクロペンチル-N-ベンジルアミノ基、N-シクロヘ キシルーN-ベンジルアミノ基、N、N-ジフェニルアミノ基、N、N-ジ(1-ナフチ ル) アミノ基、N, N-ジ(2-ナフチル) アミノ基、N, N-ジ(4-フェニルフェニ ル) アミノ基、N. N- (4-メチルフェニル) アミノ基、N, N-ジ(3-メチルフェ ニル) アミノ基、N-フェニル-N-(1-ナフチル) アミノ基、N-フェニル-N-(2 ーナフチル)アミノ基、NーフェニルーNー(4 ーフェニルフェニル)アミノ基、Nー フェニル-N-(4-メチルフェニル)アミノ基、N-(1-ナフチル)-N-(4^-フェニルフェニル)アミノ基などの置換または未置換のアミノ基を挙げることができる。 [0030]

 $R_1 \sim R_3$ の-(X) n' -Z 基のZ である置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基の具体例としては、例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプチル基、x ないま、x ないま、x

タデシル基、1-ノニルデシル基、1-デシルウンデシル基、n-エイコシル基、n-ドコシル基、n-テトラコシル基、シクロへキシルメチル基、(1-イソプロピルシクロへキシルメチル基、(1-イソプロピルシクロへキシルンチル基、ボルネル基、イソボルネル基、1-ノルボルニル基、2-ノルボルナンメチル基、1-ビシクロ〔2.2.2〕オクチル基、1-アダマンチル基、3-ノルアダマンチル基、1-アダマンチルメチル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、1-メチルシクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基、2,6-ジメチルシクロヘキシル基、2,6-ジメチルシクロヘキシル基、3,5-ジメチルシクロヘキシル基、3,5-ジメチルシクロヘキシル基、2,4,6-トリメチルシクロヘキシル基、3,5-トリメチルシクロヘキシル基、2,4,6-トリメチルシクロヘキシル基、3,3,5-トリメチルシクロヘキシル基、2,4,6-ドリメチルシクロヘキシル基、3,3,5-ドリメチルシクロヘキシル基、2,4,6-ドリメチルシクロヘキシル基、3,3,5-ドリメチルシクロヘキシル基、2,4,6-ドリメチルシクロヘキシル基、3-セert-ブチルシクロヘキシル基、3-セert-ブチルシクロヘキシル基、3-セert-ブチルシクロヘキシル基、シクロドデシル基、シクロテトラデシル基、シクロドデシル基、シクロテトラデシル基、

[0031]

メトキシメチル基、エトキシメチル基、n-プトキシメチル基、n-ヘキシルオキシメ チル基、(2-エチルプチルオキシ)メチル基、n-オクチルオキシメチル基、n-デシ ルオキシメチル基、2-メトキシエチル基、2-エトキシエチル基、2-n-プロポキシ エチル基、2-イソプロポキシエチル基、2-n-ブトキシエチル基、2-n-ペンチル オキシエチル基、2-n-ヘキシルオキシエチル基、2-(2'-エチルブチルオキシ) エチル基、2-n-ヘプチルオキシエチル基、2-n-オクチルオキシエチル基、2-(2'-エチルヘキシルオキシ) エチル基、2-n-デシルオキシエチル基、2-n-ドデ シルオキシエチル基、2-n-テトラデシルオキシエチル基、2-シクロヘキシルオキシ エチル基、2-メトキシプロピル基、3-メトキシプロピル基、3-エトキシプロピル基 、3-n-プロポキシプロピル基、3-イソプロポキシプロピル基、3-(n-ブトキシ)プロピル基、3-(n-ペンチルオキシ)プロピル基、3-(n-ヘキシルオキシ)プ ロピル基、3-(2'-エチルブトキシ)プロピル基、3-(n-オクチルオキシ)プロ ピル基、3-(2:-エチルヘキシルオキシ)プロピル基、3-(n-デシルオキシ)プ ロピル基、3-(n-ドデシルオキシ)プロピル基、3-(n-テトラデシルオキシ)プ ロピル基、3-シクロヘキシルオキシプロピル基、4-メトキシブチル基、4-エトキシ ブチル基、4-n-プロポキシブチル基、4-イソプロポキシブチル基、4-n-ブトキ シブチル基、4-n-ヘキシルオキシブチル基、4-n-オクチルオキシブチル基、4n-デシルオキシブチル基、4-n-ドデシルオキシブチル基、5-メトキシペンチル基 、5-エトキシペンチル基、5-n-プロポキシペンチル基、6-エトキシヘキシル基、 6-イソプロポキシヘキシル基、6-n-ブトキシヘキシル基、6-n-ヘキシルオキシ ヘキシル基、6-n-デシルオキシヘキシル基、4-メトキシシクロヘキシル基、7-エ トキシヘプチル基、7-イソプロポキシヘプチル基、8-メトキシオクチル基、10-メ トキシデシル基、10-n-プトキシデシル基、12-エトキシドデシル基、12-イソ プロポキシドデシル基、テトラヒドロフルフリル基、

[0032]

[0033]

ベンジルオキシメチル基、2-ベンジルオキシエチル基、2-フェネチルオキシエチル基、2-(4'-メチルベンジルオキシ)エチル基、2-(2'-メチルベンジルオキシ)エチル基、2-(4'-クロロベン

-10

50

ジルオキシ) エチル基、3 - ベンジルオキシプロピル基、3 - (4' - メトキシベンジルオキシ) プロピル基、4 - ベンジルオキシブチル基、2 - (ベンジルオキシメトキシ) エチル基、2 - (4' - メチルベンジルオキシメトキシ) エチル基、

[0034]

[0035]

n- ブチルチオメチル基、n- ヘキシルチオメチル基、2- メチルチオエチル基、2- エチルチオエチル基、2- n- ブチルチオエチル基、2- n- オンチルチオエチル基、2- n- オンチルチオエチル基、2- n- オンチルチオエチル基、2- n- オンチルチオプロピル基、2- n- オンチルチオプロピル基、2- n- プロピルチオプロピル基、2- n- プロピルチオプチル基、2- n- プチルチオプチル基、2- n- プロピルチオプチル基、2- n- プチルチオペキシル基、2- n- n

[0036]

2-フェニルチオエチル基、2-(4'-メトキシフェニルチオ) エチル基、2-(2'-フェニルオキシエチルチオ) エチル基、<math>3-(2'-フェニルチオエチルチオ) プロピル基、

[0037]

フルオロメチル基、 3 ーフルオロプロピル基、 6 ーフルオロヘキシル基、 8 ーフルオロオクチル基、 ジフルオロメチル基、 トリフルオロメチル基、 1 、 1 ージヒドローパーフルオロエチル基、 1 、 1 ージヒドローパーフルオロー n ープロピル基、 1 、 1 、 3 ートリヒドローパーフルオロー n ープロピル基、 1 、 1 、 1 、 3 ートリヒドローパーフルオロー n ープロピル基、 1 、 1 ージヒドローパーフルオロー n ーペンチル基、 1 、 1 ージヒドローパーフルオロー n ーペンチル基、 1 、 1 ージヒドローパーフルオロー n ーペンチル基、 1 、 1 ージヒドローパーフルオロー n ーボシル基、 1 、 1 ージヒドローパーフルオロー n ーボシル基、 1 、 1 ージヒドローパーフルオロー n ーボシル基、 1 、 1 ージヒドローパーフルオロー n ーベキサデシル基、 1 、 1 ージヒドローパーフルオロー n ーベキサデシル基、 1 ・ 1 ージヒドローパーフルオロー 1 ーベキシル基、 1 ・ 1 ージレー 1 ーグロロシクロベキシル基、 1 ・ 1 ーグロロシクロベキシル基、 1 ・ 1 ーグロロンクロベキシル基、 1 ・ 1 ーグロロスチル基、 1 ・ 1 ーグロロンクロベキシル基、 1 ・ 1 ーグロロスチル基、 1 ・ 1 ーグロスター 1 ・

[0038]

2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシプロピル基、3-ヒドロキシプロピル基、3-ヒドロキシブチル基、4-ヒドロキシブチル基、6-ヒドロキシへキシル基、5-ヒド

ロキシヘプチル基、8-ヒドロキシオクチル基、10-ヒドロキシデシル基、12-ヒドロキシドデシル基、2-ヒドロキシシクロヘキシル基などの置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基を挙げることができるが、これらに限定されるものではない

[0039]

また、 $R_1 \sim R_3$ の - (X) n ' - Z 基の 2 である 置換または未置換のアリール基の具体例としては、フェニル基、1- ナフチル基、2- ナフチル基、2- アントラセニル基、9- メチル- 1 0- アントラセニル基、9- フェニル- 1 0- アントラセニル基、1- フェナントリル基、2- フェナントリル基、3- フェナントリル基、3- フェナントリル基、3- フェナントリル基、3- フェナントリル基、3- フェナントリル基、1- メチル- 9- フェナントリル基、1- スチル- 9- フェナントリル基、1- スチル- 9- フェナントリル基、1- スチル- 9- フェナントリル基、1- ステントリル基、1- ステントリルエテントリル基、1- ステントリルエテントリル

[0040]

1-ピレニル基、2-ピレニル基、1-フェニルー2-ピレニル基、1-メチルー2-ピレニル基、2-フェニル-1-ピレニル基、2-メチル-1-ピレニル基、4,5-ジ メチル-1-ピレニル基、6-フェニル-1-ピレニル基、6-メチル-1-ピレニル基 . 6 - tert-ブチル-1-ピレニル基、6-シクロヘキシル-1-ピレニル基、7-フェ ニルー1-ピレニル基、7-メチルー1-ピレニル基、7-フェニルー2ーピレニル基、 7-メチル-2-ピレニル基、7-tert-ブチル-2-ピレニル基、1,8-ジフェニル - 2 - ピレニル基、1,8 - ジメチル-2 - ピレニル基、5,9 - ジシクロヘキシル-2 - ピレニル基、3.6-ジフェニル-1-ピレニル基、3,6-ジメチル-1-ピレニル 基、3,6-ジ-tert-ブチルー1-ピレニル基、8-メチルー1-ピレニル基、8-tert-ブチルー1-ピレニル基、8-フェニルー1-ピレニル基、9-フェニルー1-ピレニル 基、9-フェニル-2-ピレニル基、9-メチル-2-ピレニル基、10-フェニル-1 - ピレニル基、10-メチル-1-ピレニル基、10-フェニル-2-ピレニル基、10 - メチル-2-ピレニル基、9-メチル-1-ピレニル基、3,6,8-トリメチル-1 - ピレニル基、3, 6, 8 - トリフェニル-1 - ピレニル基、3, 6 - ジメチル-8 - フ ェニルー1-ピレニル基、9,10-ジメチルー1-ピレニル基、9,10-ジフェニル - 1 - ピレニル基、4、9 - ジメチル- 1 - ピレニル基、4、9 - ジフェニル- 1 - ピレ ニル基、9,5-ジメチル-2-ピレニル基、4,5,9,10-トリメチル-2-ピレ ニル基、3-フルオランテニル基、2-フルオランテニル基、7-フルオランテニル基、 8-フルオランテニル基、4-キノリニル基、3-キノリニル基、2-キノリニル基、4 - ピリジニル基、3-ピリジニル基、2-ピリジニル基、2-ピリミジニル基、2-ピリ ダジニル基、2-ピラジニル基、3-フラニル基、2-フラニル基、3-チエニル基、2 - チエニル基、2-ベンゾフラニル基、2-ベンゾチオフェニル基、2-オキサゾリル基 、2-チアゾリル基、2-ベンゾオキサゾリル基、2-ベンゾチアゾリル基、2-ベンゾ イミダゾリル基、4-メチルフェニル基、3-メチルフェニル基、2-メチルフェニル基 、4-エチルフェニル基、3-エチルフェニル基、2-エチルフェニル基、4-n-プロ ピルフェニル基、4-イソプロピルフェニル基、2-イソプロピルフェニル基、4-n-ブチルフェニル基、4-イソブチルフェニル基、4-sec-ブチルフェニル基、2-sec-ブチルフェニル基、4-tert-ブチルフェニル基、3-tert-ブチルフェニル基、2-te rtブチルフェニル基、4-n-ペンチルフェニル基、4-イソペンチルフェニル基、2-ネオペンチルフェニル基、4-tertーペンチルフェニル基、4-n-ヘキシルフェニル基 、4-(2.-エチルブチル)フェニル基、4-n-ヘプチルフェニル基、4-n-オク

チルフェニル基、 4 - (2 ' - エチルヘキシル)フェニル基、 4 - tert-オクチルフェニ

20

30

40

50

[0041]

4-メトキシフェニル基、3-メトキシフェニル基、2-メトキシフェニル基、4-エ トキシフェニル基、3-エトキシフェニル基、2-エトキシフェニル基、4-n-プロポ キシフェニル基、3-n-プロポキシフェニル基、4-イソプロポキシフェニル基、3-イソプロポキシフェニル基、2-イソプロポキシフェニル基、4-n-ブトキシフェニル 基、4-イソプトキシフェニル基、2-sec-プトキシフェニル基、4-n-ペンチルオ キシフェニル基、4ーイソペンチルオキシフェニル基、2-イソペンチルオキシフェニル 基、4-ネオペンチルオキシフェニル基、2-ネペンチルオキシフェニル基、4-n-ヘ キシルオキシフェニル基、2-(2'-エチルブチルオキシ)フェニル基、4-n-オク チルオキシフェニル基、4-n-デシルオキシフェニル基、4-n-ドデシルオキシフェ ニル基、4-n-テトラデシルオキシフェニル基、4-シクロヘキシルオキシフェニル基 、2-シクロヘキシルオキシフェニル基、2-メトキシ-1-ナフチル基、4-メトキシ - 1 - ナフチル基、 4 - n - プトキシ- 1 - ナフチル基、 5 - エトキシ- 1 - ナフチル基 、6-メトキシ-2-ナフチル基、6-エトキシ-2-ナフチル基、6-n-ブトキシ-2-ナフチル基、6-n-ヘキシルオキシ-2-ナフチル基、7-メトキシ-2-ナフチ ル基、7-n-ブトキシー2-ナフチル基、2-メチル-4-メトキシフェニル基、2-メチルー5ーメトキシフェニル基、3ーメチルー5ーメトキシフェニル基、3ーエチルー 5 - メトキシフェニル基、2 - メトキシー4 - メチルフェニル基、3 - メトキシー4 - メ チルフェニル基、2,4-ジメトキシフェニル基、2,5-ジメトキシフェニル基、2. 6-ジメトキシフェニル基、3,4-ジメトキシフェニル基、3,5-ジメトキシフェニ ル基、3,5-ジエトキシフェニル基、3,5-ジ-n-ブトキシフェニル基、2-メト キシー4-エトキシフェニル基、2-メトキシー6-エトキシフェニル基、3.4.5-トリメトキシフェニル基、4ーフェニルフェニル基、3-フェニルフェニル基、2-フェ ニルフェニル基、4-(4'-メチルフェニル)フェニル基、4-(3'-メチルフェニ ル)フェニル基、4-(4'-メトキシフェニル)フェニル基、4-(4'-n-ブトキ シフェニル)フェニル基、2-(2'-メトキシフェニル)フェニル基、4-(4'-ク ロロフェニル)フェニル基、3-メチル-4-フェニルフェニル基、3-メトキシ-4-フェニルフェニル基、4ーフェノキシフェニル基、4-(1-ナフチルオキシ)フェニル 基、4-(2-ナフチルオキシ)フェニル基、3-フェノキシフェニル基、2-フェニキ シフェニル基、3-(1-ナフチルオキシ)フェニル基、8-フェニキシ-2-キノリニ ル基、4-フルオロフェニル基、3-フルオロフェニル基、2-フルオロフェニル基、4 ークロロフェニル基、3ークロロフェニル基、2ークロロフェニル基、4ープロモフェニ ル基、3-プロモフェニル基、2-プロモフェニル基、4-クロロ-1-ナフチル基、4 ークロロー2ーナフチル基、6ープロモー2ーナフチル基、2、3ージフルオロフェニル 基、2,5-ジフルオロフェニル基、2,6-ジフルオロフェニル基、3,4-ジフルオ ロフェニル基、3.5ージフルオロフェニル基、2.3ージクロロフェニル基、2.4ー ジクロロフェニル基、2,5-ジクロロフェニル基、3,4-ジクロロフェニル基、3,

5 - ジクロロフェニル基、2、5 - ジプロモフェニル基、2、4、6 - トリクロロフェニ

ル基、2、4-ジクロロ-1-ナフチル基、1、6-ジクロロ-2-ナフチル基、2-フルオロ-4-メチルフェニル基、2-フルオロ-5-メチルフェニル基、3-フルオロー2-メチルフェニル基、3-フルオロー4-メチルフェニル基、2-メチルー4-フルオロフェニル基、2-メチルー4-フルオロフェニル基、3-メチルー4-フルオロフェニル基、2-クロロー4-メチルフェニル基、2-クロロー4-メチルフェニル基、2-クロロー5-メチルフェニル基、2-クロロー6-メチルフェニル基、2-メチルー3-クロロフェニル基、2-メチルー4-クロロフェニル基、2-メチルー4-クロロフェニル基、2-フルオロー4,6-ジメチルフェニル基、2-フルオロー4-メトキシフェニル基、3-フルオロー4-エトキシフェニル基、2-フルオロー6-メトキシフェニル基、3-フルオロー4-エトキシフェニル基、3-クロロー4-メトキシフェニル基、2-ブルオロー4-エトキシフェニル基、3-クロロー4-メトキシフェニル基、2-ブメトキシフェニル基、5-クロロー2、4-ジメトキシフェニル基を挙げることができるが、これらに限定されるものではない。

[0042]

 $R_1 \sim R_3$ の - (X) n' - Z 基の Z の 置換または未置換のアラルキル基の具体例とし ては、例えば、ベンジル基、 α – メチルベンジル基、 α – エチルベンジル基、フェネチル 基、α-メチルフェネチル基、β-メチルフェネチル基、α,αージメチルベンジル基、 α, α-ジメチルフェネチル基、4-メチルフェネチル基、4-メチルベンジル基、3-メチルベンジル基、2-メチルベンジル基、4-エチルベンジル基、2-エチルベンジル 基、4-イソプロピルベンジル基、4-tert-ブチルベンジル基、2-tert-ブチルベン・ ジル基、4-tert-ペンチルベンジル基、4-シクロヘキシルベンジル基、4-n-オク チルベンジル基、4ーtertーオクチルベンジル基、4-アリルベンジル基、4-ベンジル ベンジル基、4-フェネチルベンジル基、4-フェニルベンジル基、4-(4'-メチル フェニル)ベンジル基、4-メトキシベンジル基、2-メトキシベンジル基、2-エトキ シベンジル基、4-n-ブトキシベンジル基、4-n-ヘプチルオキシベンジル基、4n-デシルオキシベンジル基、4-n-テトラデシルオキシベンジル基、4-n-ヘプタ デシルオキシベンジル基、3.4-ジメトキシベンジル基、4-メトキシメチルベンジル 基、4-イソプトキシメチルベンジル基、4-アリルオキシベンジル基、4-ビニルオキ シメチルベンジル基、4-ベンジルオキシベンジル基、4-フェネチルオキシベンジル基 、4-フェニルオキシベンジル基、3-フェニルオキシベンジル基、

4-ヒドロキシベンジル基、3-ヒドロキシベンジル基、2-ヒドロキシベンジル基、4-ヒドロキシ-3-メトキシベンジル基、4-フルオロベンジル基、2-フルオロベンジル基、3-クロロベンジル基、2-クロロベンジル基、3,4-ジクロロベンジル基、2-フルフリル基、ジフェニルメチル基、1-ナフチルメチル基、2-ナフチルメチル基などのアラルキル基を挙げることができる。

[0043]

また、-(X) n'-Z 基の X は酸素原子または硫黄原子を表し、好ましくは酸素原子を表す。-(X) n'-Z 基の n' は 0 または 1 を表す。

[0044]

一般式(1)で表されるアミン化合物において、1、mおよびnは0~4の整数を表す 40、1、mおよびnは好ましくは0~3の整数を表し、より好ましくは0~2の整数を表す

[0045]

l、mおよびnが2以上の場合、 $R_1 \sim R_3$ は隣接する置換基同士で環を形成していてもよい。

[0046]

一般式(1)で表されるアミン化合物において、 A_1 および A_2 は下記一般式(2)(化6)で表される基を表す。

[0047]

(2)

[0048]

(式中、Ar」およびAr2は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表し、Ar」およびAr2が、互いに結合して環を形成していてもよい)

[0049]

一般式(2)で表される基において、Ar」およびAr2は置換または未置換のアリール基、置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、置換または未置換のアラルキル基を表す。

[0050]

好ましくは、炭素原子数 6 ~ 3 0 の置換または未置換のアリール基、炭素原子数 1 ~ 2 0 の置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、炭素原子数 7 ~ 3 0 の置換または未置換のアラルキル基を表し、より好ましくは、炭素原子数 6 ~ 2 5 の置換または未置換のアリール基、炭素原子数 1 ~ 1 5 の置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、あるいは、炭素原子数 7 ~ 2 5 の置換または未置換のアラルキル基を表す。

[0051]

Ar」およびAr2の置換または未置換のアリール基の具体例としては、一(X)n'ーZ基のZの置換または未置換のアリール基の具体例として挙げた置換または未置換のアリール基を挙げることができる。

[0052]

 Ar_1 および Ar_2 の置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基の具体例としては、-(X) n'-Z 基の Z の置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基の具体例として挙げた置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基を挙げることができる。

[0053]

[0054]

一般式(1)で表されるアミン化合物において、s および t は $0 \sim 5$ の整数を表し、s + $1 \le 5$ 、 t + $m \le 5$ であり、s および t の少なくとも一方は 1 以上の整数である。好ましくは、s および t の少なくとも一方が $1 \sim 2$ であり、より好ましくは、s および t の少なくとも一方が 1 である。

[0055]

本発明の一般式(1)で表されるアミン化合物は、多くの誘導体を包含するものであるが、その好ましい3種の形態を次に示す。

-1-: 一般式(3)(化7)で表されるアミン化合物。

[0056]

$$(R_2)_{m} \xrightarrow{Ar_1} Ar_2$$

$$(R_2)_{m} \xrightarrow{R_1} (R_1)_1$$

$$(R_3)_{n} (R_3)_{n}$$

[0057]

〔式中、 R_1 および R_2 は、ハロゲン原子、あるいは一(X) n ' -Z 基(式中、Z は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、n ' は 0 または 1 を表す)を表し、 R_3 はハロゲン原子、置換もしくは無置換のアミノ基、あるいは、-(X) n ' -Z 基(式中、Z は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または飛置換のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは 1 を表す)を表し、1 、1 が 1 が 1 で 1 を表す)を表し、1 、1 が 1 で 1 を表す)を表し、1 で 1 が 1 で 1

20

30

40

[0058]

[0059]

-3-:-般式(1)において、 A_1 および A_2 が以下の条件(イ)または(ロ)を満たし、 R_1 および R_2 は、ハロゲン原子、あるいは、-(X) n'-Z基(式中、Z は置換または無置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、n'は 0 または 1 を表す)を表し、 R_3 はハロゲン原子、置換もしくは未置換のアミノ基、あるいは、-(X) n'-Z基(式中、Z は置換または未置換の直鎖、分岐鎖または環状のアルキル基、置換または未置換のアリール基、あるいは置換または未置換のアラルキル基を表し、X は酸素原子または硫黄原子を表し、n' は 0 または 1 を表す)を表すアミン化合物。

[0060]

条件(イ):一般式(1)において、s および t がそれぞれ1以上の整数である場合、 A_1 および A_2 の少なくとも一方はキノキサリン環の結合したベンゼン環上のp 一位以外の位置に結合する。

[0061]

条件(ロ):一般式(1)において、s および t がそれぞれ 1 以上の整数であり、 A_1 および A_2 の両方がキノキサリン環の結合したベンゼン環上の p 一位に位置する場合、 A_1 および/または A_2 の一般式(2)で表される基において、 A_{Γ_1} および/または A_{Γ_2} の少なくとも一方は 3 環以上の縮合炭化水素基を表す。

[0062]

上記の-1-~-3-の好ましい形態のアミン化合物は何れも、有機電界発光素子用の 材料として好適に使用可能である。

[0063]

尚、一2一の形態において、好ましくは、sおよびtのどちらか一方が0であり、他方が2又は3の整数であり、より好ましくは、sおよびtのどちらか一方が0であり、他方が2である。

[0064]

また、-3-の形態において、条件(イ)における、 A_1 および A_2 の好ましい置換位置は、m-位および/またはo-位であり、その組み合わせとしては、 A_1 および A_2 が m-位に置換した状態、 A_1 が m-位であり、 A_2 が o-位に置換した状態、あるいは A_1 および A_2 が o-位に置換した状態の 3 種の群から選ばれる組み合わせがあるが、好ましくは、 A_1 および A_2 が m-位に置換した状態、もしくは、 A_1 が m-位であり、 A_2 が o-位に置換した状態であり、より好ましくは、 A_1 および A_2 が m-位に置換した状態である。

[0065]

-3-0形態において、条件(ロ)における A r $_1$ および/または A r $_2$ の $_3$ 環以上の縮合炭化水素基としては、たとえば、 R $_1$ \sim R $_3$ の - (X) n' - Z 基の Z である置換または未置換のアリール基の具体例に挙げたアリール基で示した $_3$ 環以上の縮合炭化水素基を挙げることができるが、好ましくは、置換または未置換のアントラセニル基、置換または未置換のフェントリル基、あるいは置換または未置換のピレニル基を挙げることができ、より好ましくは、置換または未置換のアントラセニル基、あるいは置換または未置換のフェナントレニル基を挙げることが出来る。

[0066]

本発明に係る一般式(1)で表されるアミン化合物の具体例としては、例えば、以下に示す化合物を挙げることができるが(化8)~(化32)、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0067]

20

[化8]

例示化合物

A-3

[0068]

[化9]

例示化合物

例示化合物

A-11

【化10】

例示化合物

例示化合物

【化11】

例示化合物

例示化合物

[0071]

【化12】

例示化合物

例示化合物

【化13】

例示化合物

[0073]

A-44

10 .

【化14】

[0074]

【化15】

例示化合物

例示化合物

[0075]

【化16】

例示化合物

[0076]

【化17】

[0077]

【化18】

[0078]

【化19】

例示化合物

B-18

例示化合物

30

【化20】

例示化合物

[0080]

【化 2 1 】 例示化合物

例示化合物

[0081]

例示化合物

【化22】

例示化合物

[0082]

【化23】

例示化合物

例示化合物

B-56

【化24】

例示化合物

例示化合物

[0084]

【化25】

例示化合物

[0085]

【化26】

例示化合物

例示化合物

[0086]

【化27】

例示化合物

例示化合物

[0087]

【化28]

例示化合物

[0088]

例示化合物

C-5

【化29】

[0089]

【化30】

[0090]

【化31】

例示化合物

例示化合物

【化32】

例示化合物

[0092]

本発明の一般式(1)で表されるアミン化合物は其自体公知の方法により製造することができる。

[0093]

一般式(1)で表されるアミン化合物の製造(化33)

(C)

[0094]

[
$$\{L_3, 3\}$$
]

($\{L_2\}_s$ | $\{L_2\}_s$ | $\{L_2\}_s$ | $\{R_3\}_s$ | $\{R_3\}_s$ | $\{R_4\}_s$ |

[0095]

〔式中、 $R_1 \sim R_3$ 、 A_1 および A_2 、I、m、n、s および t は一般式(1)と同様の意味を表し、 L_1 および L_2 はハロゲン原子あるいはトリフルオロメタンスルホニルオキシ基等の脱離基を表す〕

[0096]

すなわち、一般式(A)で表される化合物と、一般式(B)で表されるジアミン化合物 を反応させ、一般式(C)で表されるキノキサリン化合物を製造し、その後、一般式(C)で表されるキノキサリン化合物の脱離基(L」および/またはL2)を一般式(D)お よび/または一般式(D')で表されるアミン化合物により置換することで、一般式(1) で表されるアミン化合物を製造することができる。尚、一般式 (C) で表されるキノキ サリン化合物の製造は、一般式(A)で表される化合物と、一般式(B)で表されるジア ミン化合物を、有機溶媒(例えば、イソプロパノール、2ーメトキシエタノール等の極性 溶媒)中、加熱することで実施することができる。また、一般式(C)で表される化合物 と一般式 (D) および/または一般式 (D') で表されるアミノ化合物との反応は、一般 式(C)で表される化合物と、一般式(D)および/または一般式(D')で表される化 合物を、塩基(例えば、トリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基、炭酸ナトリウム、炭 酸カリウム、tert-ブトキシカリウム、tert-ブトキシナトリウム等の無機塩基)、および パラジウム触媒〔例えば、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム、酢酸パラ ジウム/トリ(tert-ブチル)ホスフィン、酢酸パラジウム/ジシクロヘキシルフェニル ホスフィン、トリス (ジベンジリデンアセトン) ジパラジウム/トリ (tert-ブチルホス フィン)、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム/ジ(tert-ブチル)フェニ ルホスフィン、トリス(ジベンジリデンアセトン)ジパラジウム/ジ(tert-ブチル)シ クロヘキシルホスフィン〕の存在下、室温または加熱条件で反応させる方法により実施す ることができる。

[0097]

さらには、一般式 (C) で表される化合物と、一般式 (D) および/または一般式 (D) で表される化合物の反応は、塩基 (例えば、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム) および 銅触媒 (例えば、銅粉、塩化銅、臭化銅、ヨウ化銅) の存在下に加熱することによっても 実施することができる。

20

30

40

[0098]

尚、一般式 (A) で表される化合物は、例えば、以下の工程 (化34) により製造することができる。

[0099]

【化34】

$$(R_2)_{m} \xrightarrow{(L_1)_t} (R_1)_1$$

$$(R_2)_{m} \xrightarrow{(R_2)_{m}} (R_2)_{m} \xrightarrow{(R_2)_{m}} (R_1)_1$$

$$(R_2)_{m} \xrightarrow{(R_2)_{m}} (R_2)_{m} \xrightarrow{(R_2)_{m}} (R_3)_{m}$$

[0100]

〔式中、 L_1 および L_2 、 R_1 および R_2 、I、m、sおよびtは一般式(1)および(2)と同様の意味を表す〕

[0101]

すなわち、一般式 (E) で表されるアセチレン誘導体を酸化剤 (例えば、過マンガン酸カリウム) により酸化することで、一般式 (A) で表される化合物を製造することが出来る。

[0102]

次に本発明の有機電界発光素子について説明する。本発明の有機電界発光素子は、一対の電極間に、一般式(1)で表されるアミン化合物を少なくとも1種含有する層を少なくとも一層挟持してなるものである。有機電界発光素子は、通常一対の電極間に少なくとも1種の発光成分を含有する発光層を少なくとも一層挟持してなるものである。発光層に使用する化合物の正孔注入および正孔輸送、電子注入および電子輸送の各機能レベルを考慮し、所望に応じて、正孔注入成分を含有する正孔注入輸送層および/または電子注入輸送成分を含有する電子注入輸送層などの電荷注入輸送層を設けることもできる。

[0103]

例えば、発光層に使用する化合物の正孔注入機能、正孔輸送機能および/または電子注入機能、電子輸送機能が良好な場合には、発光層が正孔注入輸送層および/または電子注入輸送層を兼ねた型の素子構成として一層型の素子構成とすることができる。また、発光層が正孔注入機能および/または正孔輸送機能に乏しい場合には発光層の陽極側に正孔注入輸送層を設けた二層型の素子構成とすること機能および/または電子輸送機能に乏しい場合には発光層の陰極側に電子注入輸送層を設けた二層型の素子構成とすることができる。さらには発光層を正孔注入輸送層と電子注入輸送層で挟み込んだ構成の三層型の素子構成とすることも可能である。

[0104]

また、正孔注入輸送層、電子注入輸送層および発光層のそれぞれの層は、一層構造であっても多層構造であってもよく、正孔注入輸送層および電子注入輸送層は、それぞれの層 において、注入機能を有する層と輸送機能を有する層を別々に設けて構成することもできる。

[0105]

本発明の有機電界発光素子において、一般式(1)で表されるアミン化合物は、電荷注入輸送層(正孔注入輸送層および/または電子注入輸送層)および/または発光層の構成成分として使用することがより好ましい。

[0106]

本発明の有機電界発光素子において、一般式(1)で表されるアミン化合物は、単独で 使用してもよく、また複数併用してもよい。 20

30

40

[0107]

本発明の有機電界発光素子の構成としては、特に限定されるものではないが、例えば、 (EL-1)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図1)、(E L - 2) 陽極/正孔注入輸送層/発光層/陰極型素子(図2)、(E L - 3) 陽極/発 光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図3)、(EL-4)陽極/発光層/陰極型素子(図4)、などを挙げることができる。さらには、発光層を電子注入輸送層で挟み込んだ形 の(Ε L - 5)陽極/正孔注入輸送層/電子注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極 型素子(図5)とすることもできる。また、(EL-4)の型の素子構成としては、発光 層として発光成分を一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子、(EL-6)発光層 として正孔注入輸送成分、発光成分および電子注入成分を混合させた一層形態で一対の電 極間に挟持させた型の素子(図6)、(EL-7)発光層として正孔注入輸送成分および 発光成分を混合させた一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子(図7)、(EL-8) 発光層として発光成分および電子注入成分を混合させた一層形態で一対の電極間に挟 持させた型の素子(図8)のいずれであってもよい。

[0108]

本発明の有機電界発光素子は、これらの素子構成に限定されるものではなく、それぞれ の型の素子において、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層を複数設けることも可能 である。また、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層を発光層との間に、正孔注 入輸送成分と発光成分の混合層および/または発光層と電子注入輸送層との間に、発光成 分と電子注入輸送成分の混合層を設けることもできる。

[0109]

好ましい有機電界発光素子の構成は、(EL-1)型素子、(EL-2)型素子、(E L-5) 型素子、(EL-6) 型素子または(EL-7) 型素子であり、より好ましくは 、 (EL-1) 型素子、 (EL-2) 型素子または (EL-7) 型素子である。

[0110]

以下、本発明の有機電界発光素子の構成要素に関し、詳細に説明する。なお、例として (図1) に示す (EL-1) 陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素 子を取り上げて説明する。

[0111]

(図1)において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入輸送層、4は発光層、5は電子 注入輸送層、6は陰極、7は電源を示す。

[0112]

本発明の有機電界発光素子は基板1に支持されていることが好ましく、基板としては、 特に限定されるものではないが、透明ないし半透明である基板が好ましく、材質としては 、ソーダライムガラス、ボロシリケートガラス等のガラスおよびポリエステル、ポリカー ボネート、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリアクリレート、ポリメチルメタク リレート、ポリプロピレン、ポリエチレン等の透明性高分子が挙げられる。また、半透明 プラスチックシート、石英、透明セラミックスあるいはこれらを組み合わせた複合シート からなる基板を使用することもできる。さらに、基板に、例えば、カラーフィルター膜、 色変換膜、誘電体反射膜を組み合わせて、発光色をコントロールすることもできる。

[0113]

陽極2としては、仕事関数の比較的大きい金属、合金または導電性化合物を電極材料と して使用することが好ましい。陽極に使用する電極材料としては、例えば、金、白金、銀 、銅、コパルト、ニッケル、パラジウム、バナジウム、タングステン、酸化インジウム(In₂O₃)、酸化錫(SnO₂)、酸化亜鉛、ITO(インジウム・チン・オキサイド :Indium Tin Oxide)、ポリチオフェン、ポリピロールなどを挙げるこ とができる。これらの電極材料は単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

[0114]

陽極は、これらの電極材料を、例えば、蒸着法、スパッタリング法等の方法により、基 板の上に形成することができる。

20

[0115]

また、陽極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。陽極のシート電気抵抗は、好ましくは、数百 Ω / \square 以下、より好ましくは、 $5\sim50\Omega$ / \square 程度に設定する。

[0116]

陽極の厚みは使用する電極材料の材質にもよるが、一般に、 $5 \sim 1 \ 0 \ 0 \ 0 \ n \ m$ 程度、より好ましくは、 $1 \ 0 \sim 5 \ 0 \ 0 \ n \ m$ 程度に設定する。

[0117]

正孔注入輸送層3は、陽極からの正孔(ホール)の注入を容易にする機能、および注入 された正孔を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。

[0118]

本発明の電界発光素子の正孔注入輸送層は、一般式(1)で表される化合物および/または他の正孔注入輸送機能を有する化合物(例えば、フタロシアニン誘導体、トリアリールアミン誘導体、トリアリールメタン誘導体、オキサゾール誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、ピラゾリン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリーNービニルカルバゾールなど)を少なくとも1種使用して形成することができる。

[0119]

正孔注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、または複数併用してもよい。

[0120]

本発明の有機電界発光素子は、好ましくは、正孔注入輸送層に一般式 (1) で表される アミン化合物を含有する。本発明の有機電界発光素子において使用することができる本発 明の一般式(1)で表されるアミン化合物以外の正孔注入輸送機能を有する化合物として は、トリアリールアミン誘導体(例えば、4,4′ービス〔N-フェニルーN-(4"ー メチルフェニル) アミノ] -1, 1' -ビフェニル、4, 4' -ビス [N-フェニル-N - (3"-メチルフェニル)アミノ)-1,1'-ビフェニル、4,4'-ビス〔N-フ ェニル-N-(3"-メトキシフェニル)アミノ]-1,1'-ビフェニル、4,4'-ビス [N-フェニル-N-(1"-ナフチル) アミノ] -1, 1'-ピフェニル、3, 3'-ジメチル-4,4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ〕 -1, 1'-ビフェニル、1, 1-ビス [4'- [N, N-ジ(4"-メチルフェニル) アミノ] フェニル] シクロヘキサン、9, 10-ビス[N-(4'-メチルフェニル)-N - (4" - n - 7 + N) P = (1) Pフェニルアミノ)-6-フェニルフェナントリジン、4-メチル-N,N-ビス〔4" 4", -ビス [N', N'-ジ(4-メチルフェニル) アミノ] ビフェニルー4-イル] アニリン、N,N'-ビス〔4-(ジフェニルアミノ)フェニル〕-N,N'-ジフェニ ルー1, 3-ジアミノベンゼン、<math>N, N' ービス〔4-(ジフェニルアミノ)フェニル〕 ーメチルフェニル] アミノ] フェニルー2, 2':5', 2"ーターチオフェン、1, 3 , 5-トリス(ジフェニルアミノ)ベンゼン、4,4',4"-トリス(N-カルバゾリ イル) トリフェニルアミン、4, 4', 4"-トリス [N, N-ビス (4"'-tertーブ チルビフェニルー4""-イル)アミノ]トリフェニルアミン、1,3,5-トリス[N (4) ージフェニルアミノ」ベンゼンなど、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリー N-ビニルカルバゾールおよびその誘導体がより好ましい。

[0121]

一般式 (1) で表されるアミン化合物と他の正孔注入機能を有する化合物を併用する場合、正孔注入輸送層中に占める一般式 (1) で表されるアミン化合物の含有量は、好ましくは、0.1重量%以上、より好ましくは、0.5~99.9重量%、さらに好ましくは3~97重量%である。

[0122]

10

20

30

発光層 4 は、正孔および電子の注入機能、それらの輸送機能、正孔と電子の再結合により励起子を生成させる機能を有する化合物を含有する層である。

[0123]

発光層は、一般式(1)で表されるアミン化合物および/または他の発光機能を有する 化合物を少なくとも一種用いて形成することができる。

[0124]

一般式(1)で表されるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物としては、例えば . アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、ジケトピロロピロール誘導体、多環芳香族化 合物〔例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デ カサイクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペ ンタジエン、9,10-ジフェニルアントラセン、9,10-ビス(フェニルエチニル) アントラセン、1, 4-ビス(9'-エチニルアントセニル)ベンゼン、4, 4'-ビス (9" - エチニルアントラセニル) ビフェニル、ジベンソ [f, f] ジインデノ [1, 2, 3-cd : 1'.2'.3'-1m] ペリレン誘導体]、トリアリールアミン誘導体(例えば、正孔注入輸送 機能を有する化合物として前述した化合物を挙げることができる)、有機金属錯体〔例え ば、トリス(8 - キノリノラート)アルミニウム、ビス(10 - ベンゾ [h] キノリノラ ート) ベリリウム、2-(2'-ヒドロキシフェニル) ベンゾチアゾールの亜鉛塩、4-ヒドロキシアクリジンの亜鉛塩、3-ヒドロキシフラボンの亜鉛塩、5-ヒドロキシフラ ボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩〕、スチルベン誘導体〔 例えば、1, 1, 4, 4ーテトラフェニルー1, 3ープタジエン、4, 4'ービス(2, 2-ジフェニルビニル) ビフェニル、4, 4'-ビス[(1, 1, 2-トリフェニル) エ テニル]ビフェニル]、クマリン誘導体(例えば、クマリン1、クマリン6、クマリン7 、クマリン30、クマリン106、クマリン138、クマリン151、クマリン152、 クマリン153、クマリン307、クマリン311、クマリン314、クマリン334、 クマリン338、クマリン343、クマリン500)、ピラン誘導体(例えば、DCM1 、 D C M 2) 、 オキサゾン誘導体 (例えば、ナイルレッド) 、 ベンゾチアゾール誘導体、 ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ピラジン誘導体、ケイ皮酸エス テル誘導体、ポリーN-ビニルカルバソールおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびそ の誘導体、ポリフェニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリフ ェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリビフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリ ターフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリナフチレンビニレンおよびその誘導体、 ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体等を挙げることができる。一般式(1)で表さ れるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物としては、アクリドン誘導体、キナクリ ドン誘導体、多環芳香族化合物、トリアリールアミン誘導体、有機金属錯体およびスチル ベン誘導体が好ましく、多環芳香族化合物、有機金属錯体がより好ましい。

[0125]

また、本発明の有機電界発光素子の発光層には、一般式(1)で表されるアミン化合物 以外の発光機能を有する化合物として、燐光(三重項発光)性の化合物も使用することが 可能である。

[0126]

[0127]

本発明の有機電界発光素子は、発光層に一般式(1)で表されるアミン化合物を含有していることが好ましい。

[0128]

40

10

20

30

50

一般式(1)で表されるアミン化合物と一般式(1)で表されるアミン化合物以外の発光機能を有する化合物を併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表されるアミン化合物の割合は、好ましくは、0.001~99.999重量%に調節する。

[0129]

また、発光層は、J. Appl. Phys., <u>65</u>、3610(1989)、特開平 5 - 2 1 4 3 3 2 号公報に 記載のように、ホスト化合物とゲスト化合物(ドーパント)から形成することも可能であ る。

[0130]

一般式(1)で表されるアミン化合物は発光層のホスト化合物として使用することもでき、またゲスト化合物として使用することも可能である。一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト化合物として発光層を形成する場合、ゲスト化合物としては、例えば、前記の他の発光機能を有する化合物を挙げることができ、中でも多環芳香族化合物は好ましい。

[0131]

一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト化合物として発光層を形成する場合、一般式(1)で表されるアミン化合物に対して、ゲスト化合物は、好ましくは、0.001から40重量%、より好ましくは、0.01~30重量%、さらに好ましくは0.1~20重量%使用する

本発明の有機電界発光素子は、好ましくは、発光層に一般式 (1) で表されるアミン化 合物をホスト材料として含有する。

[0132]

一般式(1)で表されるアミン化合物をホスト材料として、他の発光機能を有する化合物と併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表されるアミン化合物は、好ましくは、40.0%~99.9%であり、より好ましくは、60.0~99.9重量%である

[0133]

ゲスト材料の使用量は、一般式(1)で表されるアミン化合物に対して0.001~40重量%、好ましくは、0.05~30重量%、より好ましくは、0.1~20重量%である。また、ゲスト材料は、単独で使用してもよく、複数併用してもよい。

[0134]

また、一般式(1)で表されるアミン化合物を、ゲスト材料として用いて発光層を形成する場合、ホスト材料としては、多環芳香族化合物、トリアリールアミン誘導体、有機金属錯体およびスチルベン誘導体が好ましく、多環芳香族化合物、有機金属錯体がより好ましい。

[0135]

一般式(1)で表されるアミン化合物をゲスト材料として使用する場合、一般式(1)で表されるアミン化合物を、好ましくは、0.001~40重量%、より好ましくは、0.01~30重量%使用する。

[0136]

電子注入輸送層 5 は、陰極からの電子の注入を容易にする機能および/または注入され 40 た電子を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。

[0137]

本発明の有機電界発光素子は、好ましくは電子注入輸送層に一般式(1)で表されるアミン化合物を含有する。本発明の有機電界発光素子において使用することができる本発明の一般式(1)で表されるアミン化合物以外の電子注入輸送機能を有する化合物としては、例えば、有機金属錯体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、ペリレン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、チオピランジオキサイド誘導体などを挙げることができる。また、有機金属錯体としては、例えば、トリス(8ーキノリノラート)アルミニウム等の有機アルミニウム錯体、ビス(10ーベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム等

50

の有機ベリリウム錯体、5-ヒドロキシフラボンのベリリウム塩、5-ヒドロキシフラボンのアルミニウム塩等を挙げることができる。好ましくは、本発明の一般式(1)で表されるアミン化合物または有機アルミニウム錯体である。ここで有機アルミニウム錯体とは、置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する有機アルミニウム錯体である。

置換または未置換の8-キノリラート配位子を有する有機アルミニウム錯体としては、 例えば、一般式(a)~一般式(c)で表される化合物を挙げることができる。

[0139]

[0138]

 $(Q)_3 - A 1 \qquad (a)$

(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表す)

[0140]

 $(Q)_2 - Al - O - L'$ (b)

(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表し、O-L'はフェノラート配位子を表し、L'はフェニル基を有する炭素数6~24の炭化水素基を表す)

[0141]

 $(Q)_2 - A I - O - A I - (Q)_2$ (c)

(式中、 Q は置換または未置換の 8 ーキノリノラート配位子を表す)·

[0142]

置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する有機アルミニウム錯体の具体例としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-メチルー8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(5-メチルー8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-ジメチルー8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-ジメチルー8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-00・ジメチルー8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-10・ジメチルー8-キノリノラート)アルミニウム、

[0143]

ウム、

ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(フェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メ チルー8-キノリノラート) (3-メチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチ ルー8-キノリノラート) (4-メチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル -8-キノリノラート) (2-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル -8-キノリノラート) (3-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル - 8 - キノリノラート)(4 - フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2 - メチル -8-キノリノラート)(2,3-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メ チル-8-キノリノラート) (2,6-ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2 ーメチルー8-キノリノラート)(3,4-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス (2-メチル-8-キノリノラート)(3,5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、 ビス (2-メチル-8-キノリノラート) (3,5-ジ-tert-ブチルフェノラート) ア ルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,6-ジフェニルフェノラー ト) アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,6-トリフェニ ルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,6 ートリメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート) 2, 4, 5, 6-テトラメチルフェノラート) アルミニウム、ピス(2-メチル-8-キ ノリノラート)(1 -ナフトラート)アルミニウム、ビス(2 -メチル-8 -キノリノラ ート) (2-ナフトラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラー ト) (2-フェニルフェノラート) アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリ ノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2.4-ジメチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル -8-キノリノラート) (3,5-ジメチルフェノラート) アルミニウム、ビス (2,4 -ジメチル-8-キノリノラート)(3,5-ジ-tert-プチルフェノラート)アルミニ

30

40

50

[0144]

 $\begin{align*} & \forall Z & (2-\chi + \nu - 8- + / y / j - h) \\ & \nu + (2-\chi + \nu - 8 - + / y / j - h) \\ & \nu + (2-\chi + \nu - 8 - + / y / j - h) \\ & \nu + (2-\chi + \nu - 8 - + / y / j - h) \\ & \nu + (2-\chi + \nu - 4 - \mu + \nu - 2) \\ & \nu + (2-\chi + \nu - 4 - \mu + \nu - 8 - \mu / y / j - h) \\ & \nu + (2-\chi + \nu - 4 - \mu + \mu - 8 - \mu / y / j - h) \\ & \nu + (2-\chi + \mu - 4 - \mu + \mu - 2) \\ & \nu + (2-\chi + \mu - 4 - \mu + \mu - 2) \\ & \nu + (2-\chi + \mu - 2) \\$

[0145]

電子注入機能を有する化合物は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。

[0146]

陰極6としては、比較的仕事関数の小さい金属、合金または導電性化合物を電極材料として使用することが好ましい。陰極に使用する電極材料としては、例えば、リチウム、リチウムーインジウム合金、リチウムフルオライド、安息香酸リチウム、酢酸リチウム等の有機酸のリチウム塩、ナトリウム、ナトリウムーカリウム合金、カルシウム、マグネシウム、マグネシムーインジウム合金、インジウム、ルテニウム、チタニウム、マンガン、イットリウム、アルミニウム、アルミニウムーリチウム合金、アルミニウムーカルシウム合金、アルミニウムーマグネシウム合金、グラファイト薄を挙げることができる。これらの電極材料は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。

陰極はこれらの電極材料を、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオン蒸着法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法により電子注入輸送層の上に形成することができる。

[0148]

[0147]

また、陰極は一層構造であってもよく、多層構造であってもよい。陰極のシート電気抵抗は数百Ω/□以下とするのが好ましい。陰極の厚みは、使用する電極材料にもよるが、通常5~1000nm、好ましくは、10~500nmとする。本発明の有機電界発光素子の発光を高率よく取り出すために、陽極または陰極の少なくとも一方の電極は、透明ないし半透明であることが好ましく、一般に、発光光の透過率が70%以上となるように陽極または陰極の材料、厚みを設定することが好ましい。

[0149]

また、本発明の有機電界発光素子は、正孔注入輸送層、発光層および電子注入輸送層の少なくとも一層中に、一重項酸素クエンチャーを含有していてもよい。一重項酸素クエンチャーとしては、特に限定されるものではないが、例えば、ルブレン、ニッケル錯体、ジフェニルイソベンゾフランが挙げられ、好ましくは、ルブレンである。

[0150]

一重項酸素クエンチャーが含有されている層としては、特に限定されるものではないが、好ましくは、発光層または正孔注入輸送層であり、より好ましくは、正孔注入輸送層である。尚、正孔注入輸送層に一重項酸素クエンチャーを含有させる場合、正孔注入輸送層中に均一に含有させてもよく、正孔注入輸送層と隣接する層(例えば、発光層、発光機能を有する電子注入輸送層)の近傍に含有させてもよい。

一重項酸素クエンチャーの含有量としては、含有される層(例えば、正孔注入輸送層)を構成する全体量の $0.01\sim50$ 重量%、好ましくは、 $0.05\sim30$ 重量%、より好ましくは、 $0.1\sim20$ 重量%である。

[0151]

正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の形成方法に関しては、特に限定されるもの

ではなく、例えば、真空蒸着法、イオン化蒸着法、溶液塗布法(例えば、スピンコート法、キャスト法、デイップコート法、バーコート法、ロールコート法、ラングミュア・ブロジェット法、インクジェット法)を使用することができる。真空蒸着法により正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を形成する場合、真空蒸着の条件は、特に限定されるものではないが、通常、10⁻⁵ Torr程度以下の真空下で、50~500℃程度のボート温度(蒸着源温度)、-50~300℃程度の基板温度で、0.005~50nm/sec程度の蒸着速度で実施することが好ましい。この場合、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層は、真空下で、連続して形成することが好ましい。連続で形成することにより諸特性に優れた有機電界発光素子を製造することが可能となる。真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を、複数の化合物を使用して形成する場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して、共蒸着することが好ましい。

10

[0152]

溶液塗布法により各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバイン ダー樹脂等とを、溶媒に溶解または分散させて塗布液とする。溶媒としては、例えば、有 機溶媒(ヘキサン、オクタン、デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メチ ルナフタレン等の炭化水素系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソプチルケ トン、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロ ロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロベンゼン、 ジクロロベンゼン、クロロトルエン等のハロゲン化炭化水素系溶媒、酢酸エチル、酢酸ブ チル、酢酸アミル、乳酸エチル等のエステル系溶媒、メタノール、プロパノール、ブタノ ール、ペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチルセ ロソルブ、エチレングリコール等のアルコール系溶媒、ジブチルエーテル、テトラヒドロ フラン、ジオキサン、ジメトキシエタン、アニソール等のエーテル系溶媒、N,Nージメ チルホルムアミド、N. N-ジメチルアセトアミド、1-メチル-2-ピロリドン、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルホキシド等の極性溶媒)、水を挙げ ることができる。溶媒は単独で使用してもよく、また複数併用してもよい。正孔注入輸送 層、発光層、電子注入輸送層の各層の成分を溶媒に分散させる場合には、分散方法として 、例えば、ボールミル、サンドミル、ペイントシェーカー、アトライター、ホモジナイザ 一等を使用して微粒子状に分散する方法を使用することができる。

20

[0153]

30

また、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層に使用しうるバインダー樹脂としては、ポリーNービニルカルバゾール、ポリアリーレート、ポリスチレン、ポリエーテル、ポリシロキサン、ポリメチルメタクリレート、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリアミドイミド、ポリアニリンカよびその誘導体、ポリフェニレンおよびその誘導体、ポリフェニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリフェニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体、ポリカーで使用してもよいできる。バインダー樹脂と使用してもよい。塗布液の濃度に設定されるものではないが、実施する場合により所望の厚みを作製するに適した濃度範囲に設定することができ、通常、0.1~50重量%、好ましくは、1~30重量%に設定する。バインダー樹脂を使用する場合、その使用量は特に限定されるものではないが、通常、正孔注入輸送層、発光層脂の含料に対してバインダー樹脂の総量に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の総量に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー樹脂の総量に対してバインダー樹脂の含料に対してバインダー根脂の含料に対してバインダー根脂の含料に対してバインダー根脂の含料に対してバインダー根脂の総量に対してバインダー根脂の発見に対してバインダー根脂の総量に対してバインダー根間の発見に対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバインダーは対してバイングに対してバインが対してバイングに対して、オースを対し、オースを対して、オースを対して、オースを対して、オースを対して、オースを対して、オースを対して、オースを対して、オースを対して、オースを対し、オースを対して、オースを対し、オースを対し、オースを対して、オースを対して、オースを対して、オースを対して、オースを対して、オースを対して、オースを対して、オースを対

40

[0154]

正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層の膜厚は、特に限定されるものではないが、通常、5nm~5μmとする。

[0155]

また、上記の条件で作製した本発明の有機電界発光素子は、酸素や水分等との接触を防 止する目的で、保護層(封止層)を設けることが好ましく、また、素子を不活性物質中(例えば、パラフィン、流動パラフィン、シリコンオイル、フルオロカーボン油、ゼオライ ト含有フルオロカーボン油)に封入して保護することもできる。保護層に使用する材料と しては、例えば、有機高分子材料(例えば、フッ素樹脂、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂 、エポキシシリコーン樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミ ド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレン オキサイド)、無機材料(例えば、ダイアモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶縁性 ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭化物、金属硫化物)、さらには、光硬化性樹脂 を挙げることができる。保護層に使用する材料は単独で使用してもよく、また複数併用し てもよい。保護層は一層構造であってもよく、また多層構造であってもよい。・

10

[0156]

また、本発明の有機電界発光素子は、電極に保護膜として金属酸化物膜(例えば、酸化 アルミニウム膜)、金属フッ化膜を設けることもできる。

[0157]

本発明の有機電界発光素子は、陽極の表面に界面層(中間層)を設けることもできる。 界面層の材質としては、有機リン化合物、ポリシラン、芳香族アミン誘導体、フタロシア ニン誘導体等を挙げることができる。

[0158]

さらに、電極、例えば、陽極はその表面を、酸、アンモニア/過酸化水素、あるいはプ 20 ラズマで処理して使用することもできる。

[0159]

本発明の有機電界発光素子は、通常、直流駆動型の素子として使用することができるが 、交流駆動型の素子としても使用することができる。また、本発明の有機電界発光素子は 、セグメント型、単純マトリック駆動型等のパッシブ駆動型であってもよく、TFT(薄 膜トランジスタ)型、MIM(メタルーインスレーターーメタル)型等のアクティブ駆動 型であってもよい。駆動電圧は通常、2~30Vである。本発明の有機電界発光素子は、 パネル型光源(例えば、時計、液晶パネル等のバックライト)、各種の発光素子(例えば 、LED等の発光素子の代替)、各種の表示素子〔例えば、情報表示素子(パソコンモニ ター、携帯電話・携帯端末用表示素子)〕、各種の標識、各種のセンサーなどに使用する ことができる。

30

[0160]

以下、実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は、以下の実施例に限 定されるものではない。

【実施例1】

[0161]

例示化合物 A - 2 の製造

(1)、2-(4'-ブロモフェニル)-3-フェニルキノキサリンの製造 4-プロモベンジル40.46g(0.14mol) および1.2-フェニレンジアミン 15. 12g (0. 14mol) をイソプロパノール300mlに懸濁させ、80℃で4 時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、2 - (4'-プロモフェニル)-3-フェニルキノキサリン38.54gを無色の結晶とし て得た。

40

[0162]

(2) 例示化合物 A - 2 の製造

2- (4'-プロモフェニル)-3-フェニルキノキサリン3.62g(10mmol) 、N- (2-ナフチル) アニリン2. 19g (10mmol) 、tert-ブトキシナトリウ ム1.34g(14mmol)、酢酸パラジウム22mg、ジシクロヘキシルフェニルホ スフィン25mgおよびトルエン40gよりなる混合物をアルゴン気流下、90℃に加熱 し、同温度で6時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温まで冷却し、不溶物を

ろ別し、ろ液を水洗した後、ろ液より減圧下にトルエンを留去した。残渣をシリカゲルカ ラムクロマトグラフィーにより精製し、さらに、トルエン/n-ヘキサンより再結晶し、 目的とする例示化合物 A-2を淡黄色結晶として2.04g得た。

 $FD - MS : 499 (M^+)$

元素分析:計算值(%);C,86.55;H,5.04;N,8.41 分析值(%); C, 86.7; H, 5.0; N, 8.3

さらに、該化合物を280°、2.·0×10⁻⁴ Paで昇華精製した。

【実施例2】

[0163]

例示化合物 A - 6 の製造

実施例1の(2)において、N-(2-ナフチル)アニリン2.19g(10mmol) を使用する代わりに、N- (9-アントリル) アニリン 2. 7 0 g (1 0 m m o l) を 使用した以外は、実施例1の(2)に記載の操作に従い、例示化合物A-6の化合物を淡 黄色結晶として2.63g得た。

 $FD - MS : 549 (M^{+})$

元素分析:計算值(%); C, 87.40; H, 4.96; N, 7.64 分析值(%); C, 87.5; H, 5.0; N, 7.5

さらに、該化合物を300℃、2.0×10⁻⁴ Paで昇華精製した。

【実施例3】

例示化合物 A - 8 の製造

[0164]

実施例1の(2)において、N-(2-ナフチル)アニリン2.19g(10mmol) を使用する代わりに、N-(9'-アントリル)-1-ナフチルアミン3.20g(1 0 m m o 1) を使用した以外は、実施例1の(2) に記載の操作に従い、例示化合物A-8の化合物を淡黄色結晶として3.15g得た。

 $FD - MS : 599 (M^{+})$

元素分析:計算值(%); C, 88.12; H, 4.87; N, 7.01 分析值(%); C, 88.1; H, 4.9; N, 7.0 さらにこの化合物を310℃、2.0×10⁻⁴ Paで昇華精製した。

【実施例4】

[0165]

例示化合物 A-17の製造

(1) - (4' - ブロモフェニル) - 3 - (4" - フェニルフェニル) キノキサリンの製 造

4-プロモ-4'-ジプロモベンジル28.60g(0.10mol)および1,2-フェニレンジアミン10.80gをイソプロパノール150mlに懸濁させ、80℃で5 時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、2 - (4'-プロモフェニル) - 3 - (4"-フェニルフェニル) キノキサリン25.42 gを無色の結晶として得た。

[0166]

(2) 例示化合物 A-17の製造

2-(4'-プロモフェニル)-3-(4"-フェニルフェニル) キノキサリン4.37 g (10mmol)、N-(2-ナフチル) アニリン2. 19g (10mmol)、tert -プトキシナトリウム 1.3 4 g (1 4 m m o l)、酢酸パラジウム 2 2 m g、ジシクロ ヘキシルフェニルホスフィン25mgおよびトルエン40gよりなる混合物をアルゴン気 流下、90℃に加熱し、同温度で6時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温ま で冷却し、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、ろ液より減圧下にトルエンを留去した。 残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらに、トルエン/n-ヘキ サンより再結晶し、目的とする例示化合物A-17を淡黄色結晶として3.84g得た。 $FD - MS : 575 (M^+)$

40

10

20

30

元素分析:計算值(%); C, 87.62; H, 5.08; N, 7.30

分析值(%); C, 87.7; H, 5.0; N, 7.3

さらに、該化合物を310℃、2.0×10⁻⁴ Paで昇華精製した。 【実施例5】

[0167]

例示化合物 A-34の製造

(1) 2-(4'-プロモフェニル)-3-[4"-(キノリンー2"'-イル)フェニル]キノキサリンの製造

4 - プロモー 4 ' - (キノリン- 2 " - イル) ベンジル 4 1 . 6 0 g (0 . 1 m o 1) 、 1 、 2 - フェニレンジアミン 1 0 . 8 0 g (0 . 1 m o 1) をイソプロパノール 2 0 0 m 1 に懸濁させ、 8 0 ℃に加熱して 6 時間加熱攪拌を行った。 その後、反応混合物を室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、 2 - (4 ' - プロモフェニル) - 3 - [4 " - (キノリン- 2 " ' - イル) フェニル] キノキサリン 4 2 . 6 5 g を 得た。

[0168]

(2) 例示化合物 A-34の製造

 $FD - MS : 626 (M^+)$

元素分析:計算値(%); C, 86.24; H, 4.82; N, 8.94 分析値(%); C, 86.3; H, 4.7; N, 9.0

さらに、該化合物を320℃、2.0×10⁻⁴ Paで昇華精製した。

【実施例6】

[0169]

例示化合物 A - 62の製造

(1) 2-(3'-プロモフェニル)-3-(9",9"-ジメチル-9"H-フルオレン-2"-イル) キノキサリンの製造

1-(3'-7ロモフェニル)-2-(9",9"-ジメチル-9"H-フルオレンー2"-イル) エタン-1,2-ジオン40.4g(0.1mol)、1,2-フェニレンジアミン10.80g(0.1mol)をイソプロパノール200mlに懸濁させ、80℃に加熱して6時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、2-(3'-プロモフェニル)-3-(9",9"-ジメチル-9"H-フルオレン-2"-イル)キノキサリン43.25gを得た。

[0170]

(2) 例示化合物 A - 62の製造

2-(4'-70+71)-3-(9",9"-3) メチルー9" H-70+71 レンー2"ーイル)キノキサリン4.7 6 g($10\,mmo1$)、N-(2-70+71) アニリン2.1 9 g($10\,mmo1$)、tert-プトキシナトリウム1.3 4 g($14\,mmo1$)、酢酸パラジウム $22\,mg$ 、ジシクロヘキシルフェニルホスフィン0.0 $25\,g$ およびトルエン $40\,g$ よりなる混合物をアルゴン気流下、 $90\,nmo1$ に加熱し、同温度で 6 時間加熱攪拌を行った。その後、反応混合物を室温まで冷却し、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、ろ液より減圧下にトルエンを留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらに、トルエン/n-ヘキサンより再結晶し、目的とする例示化合物 $A-6\,nmo1$ を淡黄色結晶として A.2 B0 得た。

40

30

10

 $FD-MS:665(M^+)$

元素分析:計算值(%);C,88.39;H,5.30;N,6.31

分析值(%);C,88.4;H,5.3;N,6.3

さらに、該化合物を340℃、2.0×10⁻⁴ Paで昇華精製した。

【実施例7】

[0171]

例示化合物 B-2の製造

(1) 2, 3-ビス(4'-プロモフェニル) キノキサリンの製造

4, 4'ージプロモベンジル51.52g(0.14mol) および1, 2ーフェニレンジアミン15.12g(0.14mol) をイソプロパノール300mlに懸濁させ、80℃で4時間加熱攪拌を行った。その後、室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、2,3ービス(4'ープロモフェニル) キノキサリン53.44gを無色の結晶として得た。

[0172]

(2) 例示化合物 B-2の製造

2、3-ビス(4'-プロモフェニル)キノキサリン4. 40 g(10 m m o 1)、N-(9-フェナントリル)-1-ナフチルアミン6. 38 g(20 m m o 1)およびtert-ブトキシナトリウム2. 65 g(27. 6 m m o 1)、酢酸パラジウム45 m g およびトルエン100 g よりなる混合物に窒素気流下、トリ-tert-ブチルホスフィン0. 12 m 1 を添加し、90 でに加熱し、さらに同温度で6 時間加熱攪拌した。その後、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、ろ液からトルエンを減圧下に留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらにメチルセロソルブより再結晶して目的とする例示化合物 B-2 の化合物を淡黄色結晶として4. 89 g 得た

 $FD - MS : 9 1 6 (M^+)$

元素分析:計算値(%); C, 89.06; H, 4.84; N, 6.11 分析値(%); C, 89.1; H, 4.8; N, 6.1

さらにこの化合物を380℃、2.0×10⁻⁴ Paの条件で昇華精製した。

【実施例8】

[0173]

例示化合物 B-3の製造

 $FD - MS : 968 (M^+)$

元素分析:計算値(%); C, 89.23; H, 4.99; N, 5.78 分析値(%); C, 89.2; H, 5.0; N, 5.8

さらにこの化合物を360℃、2.0×10⁻⁴ Paの条件で昇華精製した。

【実施例9】

[0174]

例示化合物 B-7の製造

実施例 7 の (2) において、N - (9 - フェナントリル) - 1 - ナフチルアミン 6.3 8 g (20 m m o 1) を使用する代わりに、N - (9 - フェナントリル) アニリン 5.3 8 g (20 m m o 1) を使用した以外は、実施例 7 の (2) に記載の操作に従い、例示化

 $FD-MS:816(M^+)$

元素分析:計算值(%); C, 88.21; H, 4.93; N, 6.86

合物B-7の化合物を淡黄色結晶として4.92g得た。

分析值(%); C, 88.3; H, 4.9; N, 6.8

さらにこの化合物を390℃、2.0×10⁻⁴ Paの条件で昇華精製した。

【実施例10】

[0175]

40

例示化合物 B-27の製造

 $FD - MS : 864 (M^{+})$

元素分析:計算値(%); C, 88.86; H, 4.66; N, 6.48 分析値(%); C、88.9; H、4.7; N、6.5

さらにこの化合物を390℃、1.0×10⁻⁴ Paの条件で昇華精製した。

【実施例11】

[0176]

例示化合物 B-34の製造

実施例 7 の(2) において、 N - (9 - 7 x + y +

 $FD - MS : 968 (M^{+})$

元素分析:計算値(%); C, 89.23; H, 4.99; N, 5.78 分析値(%); C, 89.2; H, 5.0; N, 5.8

さらにこの化合物を390℃、3.0×10⁻⁴ Paの条件で昇華精製した。

【実施例12】

[0177]

例示化合物 B-59の製造

(1) 2, 3-ビス(3'-プロモフェニル) キノキサリンの製造

3、3'ージプロモベンジル51.52g(0.14mol)および1、2ーフェニレンジアミン15.12g(0.14mol)をイソプロパノール300mlに懸濁させ、80℃で4時間加熱攪拌を行った。その後、室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、2、3ービス(3'ープロモフェニル)キノキサリン44.36gを無色の結晶として得た。

[0178]

(2) 例示化合物 B-59の製造

2、3-ビス(3'-ブロモフェニル)キノキサリン4.40g(10mmol)、N-(9-フェナントリル)アニリン5.38g(20mmol)およびtert-ブトキシナトリウム2.65g(27.6mmol)、酢酸パラジウム45mgおよびトルエン100gよりなる混合物に窒素気流下、トリーtert-ブチルホスフィン0.12mlを添加し、90℃に加熱し、さらに同温度で6時間加熱攪拌した。その後、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、ろ液からトルエンを減圧下に留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらにメチルセロソルブより再結晶して目的とする例示化合物B-59の化合物を淡黄色結晶として4.89g得た

 $FD - MS : 816 (M^{+})$

元素分析:計算値(%); C, 88. 21; H, 4. 93; N, 6. 86 分析値(%); C, 88. 2; H, 4. 9; N, 6. 9

さらにこの化合物を380℃、1.4×10⁻⁴ Paの条件で昇華精製した。

【実施例13】

[0179]

例示化合物 B-84の製造

(1)2-(3'-プロモフェニル)-3-(4"-プロモフェニル)キノキサリンの製造

3、4'-ジプロモベンジル51.52g(0.14mol)および1、2-フェニレンジアミン15.12g(0.14mol)をイソプロパノール300mlに懸濁させ、80 \mathbb{C} で4時間加熱攪拌を行った。その後、室温に冷却し、生成した結晶をろ別し、2-

10

20

30

40

--

(3'-プロモフェニル). -3-(4"-プロモフェニル) キノキサリン <math>41.56g を 無色の結晶として得た。

[0180]

(2) 例示化合物 B-84の製造

2-(3'-7ロモフェニル)-3-(4"-7ロモフェニル)キノキサリン4.40g(10mmol)、N-(9-7ェナントリル)アニリン5.38g(20mmol)およびtert-7トキシナトリウム2.65g(<math>27.6mmol)、酢酸パラジウム45mgおよびトルエン100gよりなる混合物に窒素気流下、トリ-tert-7チルホスフィン0.12mlを添加し、90 Cに加熱し、さらに同温度で6時間加熱攪拌した。その後、不溶物をろ別し、ろ液を水洗した後、ろ液からトルエンを減圧下に留去した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより精製し、さらにメチルセロソルプより再結晶して目的とする例示化合物 B-84 の化合物を淡黄色結晶として3.98g 得た

 $FD-MS:816(M^{+})$

元素分析:計算値(%); C, 88. 21; H, 4. 93; N, 6. 86 分析値(%); C, 88. 2; H, 4. 9; N, 6. 9

さらにこの化合物を380℃、1.0×10⁻⁴ Paの条件で昇華精製した。

【実施例14】

[0181]

有機電界発光素子の作製

厚さ150nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコク リーン (フルウチ化学製)、超純水、アセトン、イソプロパノールを用いて超音波洗浄し た。この基板を窒素ガスにより乾燥し、その後、イソプロパノールから煮沸洗浄し、さら にUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を3×10⁻⁴P aに滅圧した。先ず、ITO透明電極上に、N, N'ージフェニルーN, N'ージ(2-ナフチル) - 4, 4' - ジアミノ-1, 1' - ピフェニルを蒸着速度 0. 2 n m / s e c で75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層を形成した。次に、正孔注入輸送層の上に発 光層として、例示化合物 A - 6 と、ルブレンを、異なる蒸着源から蒸着速度 0 . 2 n m/ secと蒸着速度 0.01 nm/secで40 nmの厚さに共蒸着し、発光層を形成した 。さらに、トリス (8-キノリノラート) アルミニウムを蒸着速度 0.2 n m/s e c で 30nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層を兼ね備えた発光層を形成した。さらに、その 上に、陰極としてリチウムフルオライドを蒸着速度0.2 nm/secで1 nmの厚さに 蒸着し、その上から、アルミニウムを蒸着速度2.0nm/secで200nmの厚さに 蒸着して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保っ たまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、室温、乾燥雰囲気下、 10mA/cm²の定電流密度で連続駆動させた。初期には、6.2V、輝度870cd ノm²の黄色の発光が確認された。輝度の半減期は3300時間であった。尚、半減時間 後でも色調に変化は認められなかった。

さらに、該素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した

【実施例15】

40

50

10

[0182]

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物 A − 6 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 A − 8 の化合物を使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。素子からは黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

【実施例16】

[0183]

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物 A - 6 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 A - 1 7 の化合物を使用した以外は、実施例 1 4 に記載の操作に従い

、有機電界発光素子を作製した。素子からは、黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化がないことを確認した。

【実施例17】

[0184]

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物 A − 6 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 A − 3 4 の化合物を使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。素子からは黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

10

【実施例18】

[0185]

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物 A − 6 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 B − 3 の化合物を使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。素子からは黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

【実施例19】

[0186]

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物 A − 6 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 B − 2 7 の化合物を使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。素子からは黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

【実施例20】

[0187]

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物 A − 6 の化合物を使用する代わりに、例示化合物 B − 3 4 の化合物を使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。素子からは黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

30

[0188]

比較例1:

[0189]

比較例2:

40

実施例14において、発光層の形成にあたり、例示化合物 A − 6 の化合物を使用する代わりに、9,10 − ジ(2′−ナフチル)アントラセンを使用した以外は、実施例14に記載の操作に従い、有機電界発光素子を作製した。素子からは黄色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第1表(表1)に示した。また、有機電界発光素子を100℃で1時間放置したところ、素子からの発光が減衰していることが確認された。

[0190]

第1表

有機電界発光 素子	初期特性(室温)		半減期(室温)
	輝度 (cd/cm2)	電圧 (V)	(hr)
実施例15	880	6.2	3100
実施例16	920	6.3	3400
実施例17	730	6.1	3100
実施例18	910	6.1	4100
実施例19	950	6.2	4200
実施例20	920	6.4	3900
比較例1	590	6.1	460
比較例2	680	7.3	2300

20

10

【実施例21】

[0191]

厚さ150nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリーン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、イソプロパノールを用いて、超音波洗浄し、さらにイソプロパノールで煮沸洗浄した。この基板を窒素ガスにより乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を2×10⁻⁴ Paに減圧した。

[0192]

40

[0193]

尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、10mA/cm²の電流密度で連続駆動させた。初期には、6.1 V、輝度430 cd/m²の青色の発光が確認された。輝度の半減期は950時間であった。尚、半減時間後でも色調に変化は認められなかった。さらに、該素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化が無いことを確認した。

【実施例22】

[0194]

有機電界発光素子の作製

厚さ150nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を中性洗剤、セミコクリ

ーン(フルウチ化学製)、超純水、イソプロパノール煮沸洗浄により洗浄した。この基板を窒素ガスにより乾燥し、さらに U / V オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を 2 × 1 0 ^{- 4} P a に減圧した。

[0195]

ITO透明基板上にN,N'ージフェニルーN,N'ー(2'ーナフチル)ー4,4'ージアミノー1,1'ーピフェニルを蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。次いで、例示化合物B-59の化合物とクマリン6を異なる蒸着源から蒸着速度0.2nm/secと蒸着速度0.02nm/secで40nmの厚みに共蒸着して、発光層を形成した。さらに、発光層の上に、トリス(8ーキノリノラート)アルミニウムを蒸着速度0.2nm/secで30nmの厚みに蒸着し、2mm/secで1nmの厚みに蒸着した。その後、リチウムフルオライドを蒸着速度0.2nm/secで1nmの厚さに蒸着して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は蒸着槽の減圧を保持したまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥牙気下、室温で、10mA/cm²の低電流密度で連続駆動した。初期には6.5V、1200cd/m²の緑色発光が確認された。輝度の半減期は2500時間であった。尚、半減時間後でも色調に変化は認められなかった。

さらに、該素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化がないことを確認した

【実施例23】

[0196]

有機電界発光素子の作製

厚さ150nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を中性洗剤、セミコクリーン(フルウチ化学製)、超純水、イソプロパノール煮沸洗浄により洗浄した。この基板を窒素ガスにより乾燥し、さらにU/Vオゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着槽を2×10⁴Paに減圧した。

[0197]

ITO透明基板上にN, N'ージフェニルーN, N'ー(2'ーナフチル)ー4, 4'ージアミノー1, 1'ーピフェニルを蒸着速度0.2 nm/secで50 nmの厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。次いで、例示化合物Bー84の化合物とクマリン6を異なる蒸着源から蒸着速度0.2 nm/secと蒸着速度0.02 nm/secで40 nmの厚みに共蒸着して、発光層を形成した。さらに、発光層の上に、例示化合物Aー8の化合物を蒸着速度0.2 nm/secで20 nmの厚さに蒸着し、第1の電子注入輸送層を形成し、第1の電子注入輸送層を形成した。その後、リチウムフルオライドを蒸着速度0.2 nm/secで1nmの厚さに蒸着し、さらに、アルミニウムを蒸着速度0.2 nm/secで1nmの厚さに蒸着し、さらに、アルミニウムを蒸着速度2.0 nm/secで1nmの厚さに蒸着して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は蒸着槽の減圧を保持したまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、室温で、10mA/cm²の低電流密度で連続駆動した。初期には6.2 V、1200cd/m²の緑色発光が確認された。輝度の半減期は2500時間であった。尚、半減時間後でも色調に変化は認められなかった。

さらに、該素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化がないことを確認した

【実施例24】

[0198]

有機電界発光素子の作製

厚さ150nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を中性洗剤、セミコクリーン(フルウチ化学製)、超純水、イソプロパノール煮沸洗浄により洗浄した。この基板を窒素ガスにより乾燥し、さらにU/Vオゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固

20

30

10

定し、蒸着槽を2×10⁻⁴ Paに減圧した。

[0199]

ITO透明基板上に 4 , 4 '、4" ートリス(2" ・ーナフチルフェニルアミノ)トリフェニルアミンを蒸着速度 0 . 1 n m/secで 6 0 n mの厚さに蒸着し、第1正孔注入輸送層を形成した。次いで、例示化合物 B − 2 の化合物を蒸着速度 0 . 2 n m/secで 2 0 n mの厚みに蒸着して、第2正孔輸送層を形成した。その上に、9,10 ービス(2'ーナフチル)アントラセンと、2,5,8,11 ーテトラ-tert-ブチルペリレンを異な蒸着源から蒸着速度 0 . 2 n m/secで 4 0 n mの厚さに共蒸着して発光層を形成した。さらに、発光層の上に、トリス(8 ーキノリノラート)アルミニウムを蒸着速度 0 . 2 n m/secで 2 0 n mの厚みに蒸着し、電子注入輸送層を形成した。その後、リチウムフルオライドを蒸着速度 0 . 2 n m/secで1 n mの厚さに蒸着し、さらに、アルミニウムを蒸着速度 2 . 0 n m/secで、150 n mの厚さに蒸着して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は蒸着槽の減圧を保持でまま実施した。作製した有機電界発光素子に直流電圧を印加し、乾燥雰囲気下、室温での青色発光が確認された。輝度の半減期は1500時間であった。尚、半減時間後でも色調に変化は認められなかった。

さらに、該素子を100℃で1時間放置し、発光特性に大きな変化がないことを確認した

【実施例25】

[0200]

有機電界発光素子の作製

厚さ150nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、セミコクリーン(フルウチ化学製)、超純水、アセトン、イソプロパノールを用いて超音波洗浄した。この基板を窒素ガスにより乾燥し、その後、イソプロパノールから煮沸洗浄しく、重型平均分子量25000)、N,N'ージフェニルーN,N'ー(2'ーナフチル)ー4,4'ージアミノー1,1'ービフェニル、例示化合物Aー2の化合物、トリス(8ーキーリノラート)アルミニウムをそれぞれ重量比100:50:30:0.5の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いてスピンコート法により、120nmの発光層を形成した。次にこの発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定し、蒸着度2、0nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、蒸着度2、0nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、積電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に乾燥雰囲気下、室温で15Vの直流電圧を印加したところ、89mA/cm²の電流が流れた。輝度530cd/m²の緑色の発光が確認された。輝度の半減期は470時間であった。

【産業上の利用可能性】

[0201]

本発明により、新規なアミン化合物、および発光寿命が長く、耐久性に優れた有機電界発光素子を提供することが可能になった。

【図面の簡単な説明】

[0202]

- 【図1】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図2】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図3】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図4】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図5】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図6】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図7】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。
- 【図8】有機電界発光素子の一例の断面概略図である。

20

10

ፈበ

. 40

【符号の説明】

[0203]

1 : 基板

2 : 陽極3 : 正孔注入輸送層

3 a:正孔注入輸送成分

4:発光層

4 a : 発光成分

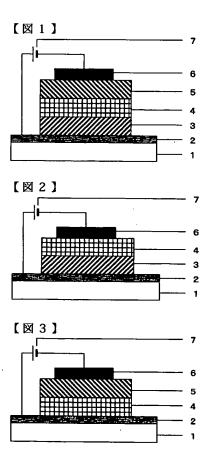
5:電子注入輸送層

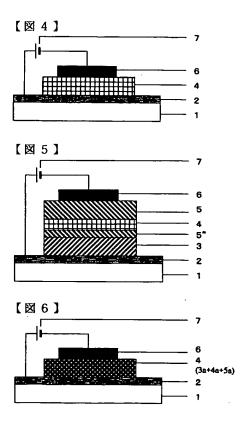
5 ":電子注入輸送層

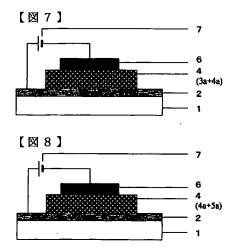
5 a:電子注入輸送成分

6 : 陰極

7:電源







フロントページの続き

(51) Int. Cl.

FΙ

テーマコード(参考)

H 0 5 B 33/22

В

H 0 5 B 33/22

D

(72)発明者 島村 武彦

千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB11 AB14 DB03

4CO63 AAO1 BBO6 CC34 CC94 DD12 DD14 DD34 EE10